

分子線エピタキシー法による CuGaS₂ 薄膜の作製と評価 (II)MBE Growth and Characterization of CuGaS₂ Thin Films (II)

鳥取大学大学院, 工学研究科 °岡優貴, 倉掛真弥, 西川直宏, 松下将也, 山田秀明, 阿部友紀, 市野邦男

Tottori Univ. °Yuuki Oka, Masaya Kurakake, Naohiro Nishikawa, Syouya Matsusita, Hideaki Yamada, Tomoki Abe, Kunio Ichino

E-mail: m13t3008@faraday.ele.tottori-u.ac.jp

[背景・目的] 現在実用化されているほとんどの太陽電池は単一の半導体の価電子帯-伝導帯間の光の吸収という動作原理に基づいており、その場合変換効率は、理論的に最大でも約 30%に制限されることが知られている。そのため飛躍的な効率向上には新たな動作原理が必要であり、その一つとして中間バンド型太陽電池が考案されている。

本研究では中間バンド型太陽電池の原理検証のため、母体材料として適したバンドギャップ (2.5eV) を持つ CuGaS₂ を採用し、その単結晶を用いた太陽電池の作製を目指している。そのために MBE によるヘテロ構造作製を念頭に CuGaS₂ 単結晶薄膜の構造評価を中心に MBE 成長条件の検討を行ってきた[1]。今回はさらに光学的評価も加えてさらに検討を進めたのでその結果を報告する。

[実験方法] MBE 法により GaP(001)基板上に CuGaS₂ 薄膜を作製した。作製した試料を X 線回折 (XRD)、電界放射型走査電子顕微鏡 (FESEM)、エネルギー分散型 X 線分析 (EDX) 測定、フォトルミネセンス (PL) 測定等で評価した。

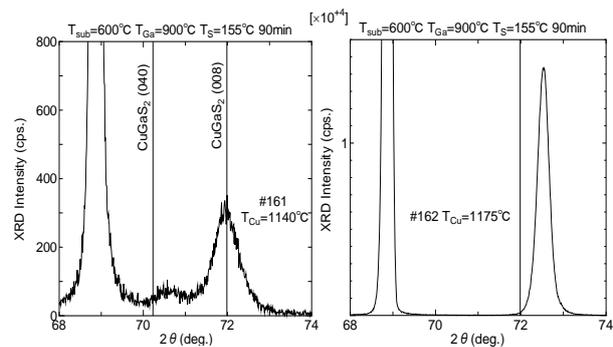
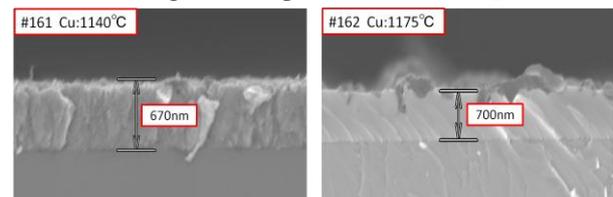
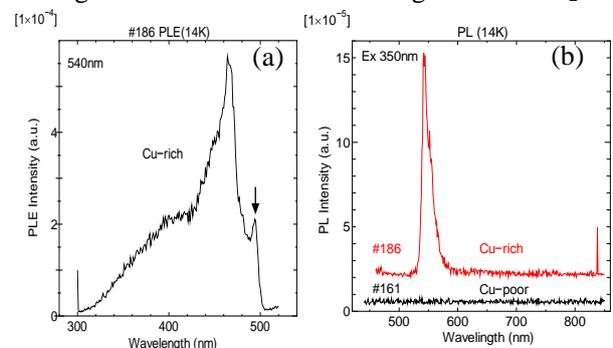
[実験結果]

図 1 に Cu セル温度を変化させた時の CuGaS₂ の XRD パターンを示す。Cu セル温度が低い (Cu-poor) 試料では回折ピークの弱い多結晶となっており結晶性が悪い。一方で Cu セル温度が高い (Cu-rich) 試料は大きな回折ピークを示しており結晶性が良い。ただし回折角度がずれて $2\theta = 72.5^\circ$ 付近に観測されている。

図 2 に断面 SEM 像を示す。Cu-poor 試料の断面は微結晶を含んだ形となっているように見え、Cu-rich 試料は比較的くっきりとした断面に見える。また、後者においては膜の表面に黒く見える Cu_xS 層が確認された。

図 3(a),(b) に Cu-rich 及び Cu-poor 試料の PLE, PL スペクトルを示す。Cu-poor 試料は発光のピークが観測されなかった。その一方で、Cu-rich 試料は波長 550nm 付近にピークが観測されていることが分かる。これは過去の報告[2]より Cu リッチ CuGaS₂ におけるドナー・アクセプタ対 (DAP) による発光の可能性が高い。その PLE スペクトルにおいて波長 494nm 付近にピーク (矢印) が観測されているがこれは CuGaS₂ の励起子吸収のピークであると推測される。

[まとめ] Cu-rich 試料は PL スペクトルにおいて CuGaS₂ の DAP 発光と考えられるピークを示した。また、PLE スペクトルにおいては CuGaS₂ の励起子吸収によるものと推測される発光ピークが観測された。しかし、今回の報告では PL スペクトルにおいて自由励起子による発光が観測されなかったため、今後はさらに厳密な組成制御を行い、ストイキオメトリに近づける必要があると考えられる。

Fig 1. XRD patterns of CuGaS₂.Fig 2. Cross-sectional SEM images of CuGaS₂.Fig 3. PL(a) & PLE(b) spectra at 14K of CuGaS₂.

[1] 岡 他, 2014 年応物春季講演会 18p-PG-9.

[2] J.R. Botha et al., Physica B 308-310 (2001) 1065.