

静電噴霧法により作製した FeS₂ 薄膜の前駆体溶液依存性

Precursor Solution Dependence on Bandgap of FeS₂ Films

via Electro Spray Deposition Method

奈良先端大 [○]土江 貴洋, 石河 泰明, 内山 俊祐, 堀田 昌宏, 浦岡 行治

NAIST, [○]Takahiro Doe, Yasuaki Ishikawa, Shunsuke Uchiyama, Masahiro Horita, Yukiharu Uraoka

E-mail: d-takahiro@ms.naist.jp

パイライト(FeS₂)は高い光吸収係数($\alpha \sim 5 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$)を示し、薄膜においても十分な光吸収を得られる新規太陽電池材料として期待される。また高クラーク数の資源豊富な低価格元素で構成され、印刷技術を用いたプリント太陽電池の大量生産が期待される。しかし FeS₂ 太陽電池の報告例は少なく、光電気化学電池(PEC)において 2.8 %と変換効率は低い[1]。これは FeS₂ の不純物の影響とフェルミ準位の制御が十分に検討されていないためと考えられる。そこで本研究では FeS₂ のバンドギャップの最適化、フェルミ準位の制御を目的として、スプレー法による FeS₂ 薄膜の形成と噴霧溶液中の前駆体の影響について検討を行った。

スプレー法には微小液滴の生成により均一な薄膜形成が可能な静電噴霧法を用い、Fe 前駆体として C, H, O を含む Fe(III)-acetylacetonate(Fe-AA)、Cl を含む FeCl₃ 溶液を用いた。これらの Fe 前駆体を TCO 基板上に噴霧、堆積した後、硫黄蒸気雰囲気下において硫化を行い、FeS₂ 薄膜を作製した。

硫黄雰囲気化において 450°C にて焼成した試料は XRD 測定によりいずれも FeS₂ 単相であることが確認された。表 1 に FeCl₃ 溶液より作製した試料のバンドギャップと、450°C における硫化時間依存性を示した。試料のバンドギャップは透過率より算出した Tauc plot により求めた。一般的な FeS₂ のバンドギャップ($E_g = 0.95 \text{ eV}$)と比較し、大幅に低い値を示した。これは試料中の Cl 等の不純物によるものと考えられる。そこで Cl を含まない前駆体として Fe-AA 溶液を用いて FeS₂ 薄膜を作製した。表 2 に試料のバンドギャップと、焼成時間 0.5 h における硫化温度依存性を示した。硫化温度 450°C においてバルクの値に近い 0.92 eV を示し、不純物の低減が半導体材料の光吸収に大きく寄与していることが示唆された。

表 1 FeCl₃ 溶液を用いて作製した FeS₂ 薄膜の
光学バンドギャップと硫化時間依存性

Sulfuration time	E_g
0.5 h	0.41 eV
1 h	0.46 eV
2 h	0.43 eV
3 h	0.19 eV
Sulfuration at 450°C	

表 2 Fe-AA 溶液を用いて作製した FeS₂ 薄膜の
光学バンドギャップと硫化温度依存性

Sulfuration temp.	E_g
300°C	0.58 eV
400°C	0.61 eV
450°C	0.92 eV
500°C	0.56 eV
Sulfuration for 0.5 h	

[1] A. Ennaoui, S. Fiechter, C. Pettenkofer, N. Alonso-Vante, K. Buker, M. Bronold, C. Hopfner, H. Tributsch; Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 29, (1993), 289.