

化合物薄膜太陽電池の光吸収層と Mo 裏面電極界面に生成する MoSe₂ と MoS₂ の第一原理計算による電子構造の評価



Electronic structures of MoSe₂ and MoS₂ produced at interface between absorber and Mo layers in polycrystalline thin film solar cells by first-principles calculation

龍谷大理工 ^{○(PC)} 繁實 章夫, 和田 隆博

Ryukoku Univ. ^{○(PC)} Akio Shigemi, Takahiro Wada

E-mail: shigemi@ad.ryukoku.ac.jp

【緒言】 CuInSe₂(CIS)や Cu₂ZnSnS₄(CZTS)系薄膜太陽電池の裏面電極には Mo が使用される。そして、CIS や CZTS 系光吸収層と Mo 電極の界面には MoSe₂ や MoS₂ が生成することが知られている [1]。我々は分子間力(van der Waal's: vdW 力)を考慮した第一原理計算を用いて Mo-Se と Mo-S 化合物の反応エンタルピーを評価することで、光吸収層/Mo 界面には MoSe₂ や MoS₂ が容易に生成する事を示した[2]。本研究ではハイブリッド汎関数の Heyd-Scuseria-Ernzerhof (HSE) 関数を用いて、MoSe₂ と MoS₂ のバンド構造や状態密度(DOS)を計算し、これらの電子構造を評価した。

【計算】 第一原理計算プログラムは、密度汎関数論に基づく MedeA-VASP5.3 を用いた。MoSe₂ や MoS₂ の構造最適化の計算では、vdW 力を取り込んだ DFT-D2 法を用いた。電子構造の計算には HSE 関数を用いた。HSE 関数の交換エネルギー項は、 $E_x^{\text{HSE}} = \alpha E_x^{\text{HF,SR}}(\mu) + (1 - \alpha)E_x^{\text{PBE,SR}}(\mu) + E_x^{\text{PBE,LR}}(\mu)$ と表される。ここで、 α は Hartree-Fock (HF) 項の係数、 $E_x^{\text{HF,SR}}(\mu)$ は短距離の HF の交換エネルギー、 $E_x^{\text{PBE,SR}}(\mu)$ は短距離の GGA-PBE の交換エネルギー、 $E_x^{\text{PBE,LR}}(\mu)$ は長距離の GGA-PBE の交換エネルギーである。MoSe₂ に対する α と E_g の関係を Fig. 1 に示す。本研究では、MoSe₂ の電子構造を正確に評価するため、実験で報告されている MoSe₂ の E_g (間接遷移: 1.10 eV) と一致するように HSE 関数の α を決定したところ、最適値として $\alpha = 0.11$ が得られた。

【結果】 $\alpha = 0.11$ で計算した MoSe₂ のバンド構造を Fig.2 に示す。MoSe₂ は、価電子帯の上端が Γ 点で伝導帯の下端が Γ -K の中間点に位置する間接遷移型の半導体である。間接遷移の E_g は 1.09 eV で、この値は従来報告されている実験値の 1.06~1.12 eV とほぼ一致する。一方、直接遷移は K 点で起こり、この時の E_g は 1.57 eV である。この値は従来報告されている実験値の 1.35~1.40 eV より大きい。また、MoSe₂ の間接遷移の E_g は CIS の E_g (1.04 eV)よりは若干広くなる。

[1] T. Wada *et. al.*, Thin Solid Films **387**, 118 (2001)., [2] A. Shigemi *et. al.*, Tech. Dig. WCPEC-6, (2014).

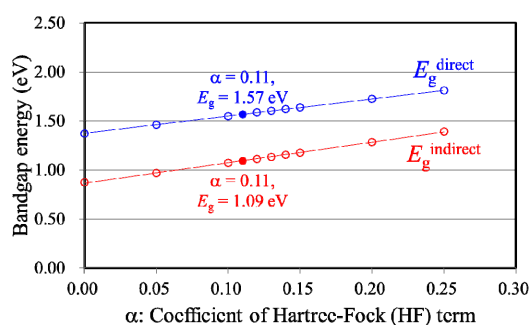


Fig. 1 Relation between E_g and α for MoSe₂

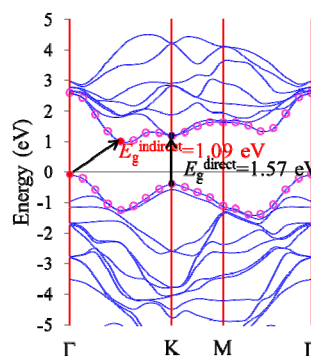


Fig. 2 Band structure of MoSe₂ by HSE with $\alpha = 0.11$