

CZTGSe 表面における電子状態と欠陥評価

Characterization of electronic structures and defects at the CZTGSe surface

産総研¹, 鹿児島大理工², [○]永井 武彦¹, 高木 佑誠², 石松 晃太², Kim Shinho¹, 反保 衆志¹,
柴田 肇¹, 仁木 栄¹, 寺田 教男²

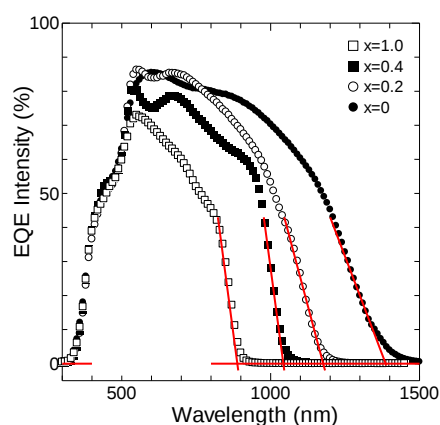
AIST¹, Kagoshima Univ.², [○]Takehiko Nagai¹, Takagi Yusei², Ishimatsu Kohta², Shinho Kim¹,
Hitoshi Tampo¹, Hajime Shibata¹, Shigeru Niki¹, and Norio Terada²

E-mail: nagai-takehi@aist.go.jp

本研究では、p 型光吸収層となるケステライト結晶構造を有する $\text{Cu}_2\text{ZnSn}_{1-x}\text{Ge}_x\text{Se}_4$ (CZTGSe)の太陽電池性能向上を目的に、正・逆光電子分光法(UPS・IPES)ならびに X 線光電子分光法 (XPS)を用い、CZTGSe 表面、ならびに、CdS/CZTGSe ヘテロ接合界面の電子状態を評価してきた。本発表では、CZTGSe 薄膜表面およびヘテロ界面の電子状態と太陽電池性能、ならびに、変換効率向上の妨げと考えられる表面欠陥について報告する。

CZTGSe 薄膜は、Mo コートしたソーダライムガラス上に、同時蒸着法により 1.5 マイクロメートル堆積し、その後、窒素雰囲気下においてアニール処理を行った。CdS の堆積と光電子分光スペクトル測定(UPS, IPES, XPS)は、超高真空条件下大気曝露することなく常に CZTGSe 清浄表面を維持しつつ行った。

光電子分光測定(UPS, IPES, XPS)から得られたスペクトルを解析した結果、CdS/CZTGSe ヘテロ界面に於ける伝導帯のバンド接続は、スパイク($x < 1$)およびフラット($x=1$)な接合界面の電子構造を有し、かつ、ヘテロ界面において少数キャリアの再結合を抑制する良好な接続をしている事が明らかとなった。[1, 2]ところが、CdS/CZTGSe ヘテロ接合太陽電池の開放電圧(V_{oc})は、Ge 組成比 $x \geq 0.2$ において飽和し、光電変換効率の急速に低下した。一方、CZTGSe 表面の IPES と UPS スペクトルの Ge 組成依存性を調べた結果、CZTGSe 表面の伝導帯下端にテール状態があり、このテールは Ge 組成の増大($x \geq 0.2$)に伴い大きくなる事が明らかとなった。一方、CdS/CZTGSe ヘテロ接合型太陽電池の外部量子効率(EQE)スペクトルの観測結果、Ge 組成の増大に伴い、バルク内におけるキャリアの再結合中心が減少していくものの、CZTGSe 表面近傍に少数キャリアの再結合中心が生成していくことが明らかとなった。これらの事から、我々は、この CZTGSe 表面に IPES のテールとして現れる欠陥が、CZTGSe 太陽電池の変換効率、特に V_{oc} を律速する要因ではないかと考えている。当日、電子親和力やイオン化ポテンシャルの観点から、取り得る表面欠陥の種類について議論を行う。



CZTGSe 太陽電池の EQE スペクトル

結合中心が生成していくことが明らかとなった。これらの事から、我々は、この CZTGSe 表面に IPES のテールとして現れる欠陥が、CZTGSe 太陽電池の変換効率、特に V_{oc} を律速する要因ではないかと考えている。当日、電子親和力やイオン化ポテンシャルの観点から、取り得る表面欠陥の種類について議論を行う。

[1] T. Nagai et al., Jap. J. Appl. Phys., **56** (2017) 065701-1.

[2] T. Nagai et al., ACS Appl. Mater. Interfaces., **11** (2019) 4637.