

パイライト型硫化物半導体 FeS_2 中の水素シミュレーション

Hydrogen simulation in the pyrite-type sulfide semiconductor FeS_2

KEK 物構研¹, 総研大², TRIUMF³, 物材機構⁴

○岡部 博孝¹, 平石 雅俊¹, 竹下 聡史^{1,2}, 幸田 章宏^{1,2}, 小嶋 健児³, 大澤 健男⁴, 大橋 直樹⁴,
門野 良典^{1,2}

KEK-IMSS¹, SOKENDAI², TRIUMF³, NIMS⁴

○H. Okabe¹, M. Hiraishi¹, S. Takeshtia^{1,2}, A. Koda^{1,2}, K. M. Kojima³, T. Ohsawa⁴, N. Ohashi⁴,
R. Kadono^{1,2}

E-mail: hirotaka.okabe@kek.jp

パイライト (FeS_2) は約 0.95 eV のバンドギャップと、0.02 μm というシリコンよりも桁違いに短い光吸収長を示すことから、低毒性で極めて廉価な太陽電池材料として注目を集めている¹⁾。しかしながら、 FeS_2 は解放端電圧が低いという問題があり、残念ながら実用化には至っていない。低電圧の原因として、表面欠陥による不均一なバンドギャップ、フェルミ準位のピンギングが挙げられるが、最近の理論計算では欠陥説が否定されるなど未だ議論の最中にある。また FeS_2 は、光触媒として水を分解する機能を持つことも知られており、比較的自由に水素が入り出ることができる性質を持つ。したがって FeS_2 中に存在する微量の水素が、隠れたキャリアの供給源として機能している可能性が考えられる。我々は疑似水素とみなせる素粒子、ミュオン (μ^+) を FeS_2 に注入することにより、ミュオンスピン回転緩和法 (μSR) を用いて、水素の電子状態をシミュレートした²⁾。
 μSR 実験結果と理論計算との比較により、

FeS_2 中に存在する水素の位置 (図 1) および不純物エネルギー準位 (図 2) を明らかにした。試料として用いた n 型伝導を示す天然結晶において、格子間位置にある μ^+ は 2 種類の異なる電子状態を占めることが分かった。これらは、それぞれ Fe-S 結合 (Mu_1) および S-S 結合を切断した位置 (Mu_2) に対応していると判断される。また、これらはいずれも浅いドナー (< 1 meV, 3.5 meV) としての電気活性を示すことを見出した。昇温脱離ガス分析 (TDS) より求めた水素

濃度 ($5.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) とホール測定による電子キャリア濃度 ($\sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) が一致することも考慮すると、水素が FeS_2 における主要な n 型伝導の起源である可能性が高いと判断される。

1) A. Ennaoui, *et al.*, Sol. Energy Mater. Sol. Cells **29**, 289 (1993). 2) H. Okabe, M. Hiraishi, S. Takeshtia, A. Koda, K. M. Kojima, and R. Kadono, Phys. Rev B **98**, 075210 (2018).

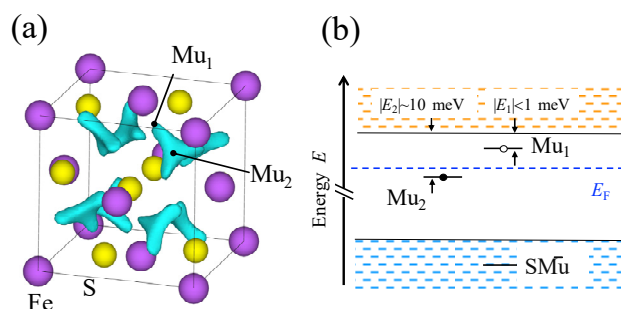


Fig. 1. (a) Atomic configuration of FeS_2 and possible candidate sites for two Mu states, where isosurfaces of the Hartree potential (0.3 eV above the -11.387 eV potential minimum) are displayed by blue hatched areas. (b) Schematic energy diagram of the electronic states associated with two interstitial Mu centers, Mu_1 and Mu_2 .