

論文内容の要旨

博士論文題目 Study on Inversion Layer at Iron Pyrite Surface for
Photovoltaic Application

(太陽光発電応用に向けた黄鉄鉱表面の反転層に関する研究)

氏名 内山 俊祐

(論文内容の要旨)

Iron pyrite は資源豊富かつ非毒性元素のみで構成された物質で、高い吸収係数かつ長い少数キャリア拡散長といった特徴を有していることから次世代薄膜太陽電池材料として期待されている。しかしながら、Iron pyrite 薄膜太陽電池は適切な太陽電池構造が確立していない点や Iron pyrite 表面に存在する反転層といった特異的な表面現象の問題により、未だに変換効率が得られていない。本研究では、高効率な素子構造の検討や表面領域の反転層に関連する物性や電気特性の本質的理解及び改善を重要課題として、課題解決に向けた手法の提案と実証を行い、Iron pyrite 薄膜太陽電池の特性改善に向けて新たな知見を得た。本論文は第1章の Introduction から第5章の Conclusions までの全5章で構成される。

第2章では、二次元デバイスシミュレーションを用いて高効率な Iron pyrite 薄膜太陽電池に向けた素子構造の検討を行った。素子構造の検討を行う際に、太陽電池特性に及ぼす影響として Iron pyrite 表面の反転層に注目し、素子構造に反転層モデルを組み込んだ。太陽電池特性の解析より、特性向上に向けて反転層を改善するだけでなく、バルク中の特性改善も必要であることが明らかとなった。具体的にはバルクの状態密度を $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 未満かつキャリア寿命を $1 \mu\text{s}$ 以上になるような物性改善を行うことで変換効率が 13.5% に達し、更なる特性改善にはバンドギャップ制御も必要であることが分かった。

第3章では、Iron pyrite 表面上に存在する酸化物が反転層形成の要因になっていると考え、酸化物除去に向けた表面処理技術の開発を行った。Iron pyrite 単結晶を作製し、XPS を用いて表面の化学結合状態を評価する事によって表面処理の効果を調べた。深さ方向測定やスペクトル解析より、王水処理によって表面層の酸化物は除去されたが、空気中の酸素や水分が Iron pyrite 表面に直ちに吸着し、 $\text{Fe}^{3+}\text{-OH}$ 種が形成される事が分かった。

第4章では、王水処理後のバンド構造や光学特性、電気輸送特性を評価する

事によって、太陽電池特性改善に向けた物性の解明を行った。酸化物除去を行うだけでは反転層やバンドベンディングは改善されていない事が明らかとなり、更なる表面処理技術の開発が必要であることが分かった。また、Iron pyrite のバルク中の固有欠陥によって伝導帯下端に局在準位が形成されることが示唆された。これは、欠陥による再結合の促進やバンドギャップ減少の要因となる可能性があり、改善すべき課題であることを明らかにした。

以上の結果より、高効率な Iron pyrite 薄膜太陽電池に向けた改善すべき新たな問題点が明らかとなり、今後の特性向上に向けた指針を見出した。本研究で得られた知見により、Iron pyrite 太陽電池に向けたプロセスの開発及び物性や電気特性の本質的理解の発展に貢献すると期待される。

氏名	内山 俊祐
----	-------

(論文審査結果の要旨)

本論文は、省資源かつ低環境負荷型太陽電池材料として期待される **Iron pyrite** 薄膜太陽電池の高効率化を目指して、高効率な素子構造の検討と太陽電池特性の劣化に繋がる原因の追究及び改善に向けたプロセス技術の開発を課題とし、その課題解決を行うものである。得られた主な成果は以下の通りである。

(1) 高効率な **Iron pyrite** 薄膜太陽電池の実現に向けてデバイスシミュレーションによる素子設計を行い、過去に報告された **Iron pyrite** 薄膜太陽電池が特性を得られなかった原因を調べると共に、太陽電池特性の改善に向けた素子構造の検討を行った。過去の素子構造において、表面の反転層によって太陽電池として適切な構造が得られていないことを本論文では明らかにした。また、高効率な太陽電池を得るには反転層の改善だけではなく、バルク中の欠陥改善やバンドギャップ制御も必要であることを数値解析より見出した。

(2) 太陽電池特性劣化の要因とされる **Iron pyrite** 表面の反転層に着目し、反転層の改善に向けた表面処理方法の開発として、王水処理による表面層の酸化物除去を提案した。酸化物除去を確認する評価方法として **XPS** による化学結合状態の解析を行った。評価試料として **Iron pyrite** 単結晶を用いた。**XPS** の深さ方向測定やスペクトル解析の結果より、本論文が提案する王水処理が酸化物除去に適した手法であることを示した。

(3) 上記の結果を踏まえ、王水処理後のバンド構造評価を行うことによって反転層の形成には酸化物が寄与していないことが明らかとなり、**LFT (Ligand Field Theory)** モデルによる表面のバンドベンディングを考察した。更に、**Iron pyrite** 単結晶のバルク中において、バンド構造の伝導帯下端に局在準位が存在することを明らかにした。この局在準位はバルク中の欠陥が形成の原因と考えられ、再結合の促進やバンドギャップ減少に繋がる可能性がある為、太陽電池化に向けて改善すべき課題であることを見出した。

以上、本論文は、高効率な **Iron pyrite** 薄膜太陽電池に向けた素子構造の確立、**Iron pyrite** の物性解明、更には今後の特性向上に向けた指針を示すものであり、学術的に寄与するところが大きい。従って、学位論文審査一同は本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。