

大規模量子化学計算を用いた量子ドット太陽電池 Si/SiC 界面におけるキャリアトラップの解析

○広瀬 祥¹, 三浦隆治¹, 鈴木 愛², 坪井秀行¹, 畠山 望¹,
遠藤 明¹, 高羽洋充¹, 久保百司¹, 宮本 明^{2,1}

¹ 東北大学大学院工学研究科 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6)

² 東北大学未来科学技術共同研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

【緒言】 量子ドット太陽電池は量子閉じ込め効果を利用した太陽電池であり、理論変換効率が 60 %以上と高いことから次世代の太陽電池として注目されている[1]。しかし、現在実験で作られている量子ドット太陽電池は変換効率が 10%程度と低い。その原因の 1 つとして、ナノ結晶界面などの欠陥構造でキャリアがトラップされ、再結合が促進され変換効率が低下することが示唆されている。そこで本研究では、界面欠陥や結晶中の欠陥構造が変換効率へ及ぼす影響を解明することを目的として計算化学手法により欠陥構造周辺でのキャリアトラップを解析した。

【方法】 図 1 に示す SiC 結晶中に Si 量子ドット(QD)を埋め込んだモデルを作成した。分子動力学法を用いてこのモデルの構造を緩和し、Tight-binding 量子化学計算手法を用いて電子状態の解析を行った。また、結晶中の代表的な欠陥構造として点欠陥に注目し、中心の C 原子 1 つを除いた点欠陥モデルを作成し、同様に電子状態解析を行った。求めた電子状態をもとに、モンテカルロ法に基づくキャリア移動シミュレーションを行い、QD/バルク界面や点欠陥周辺におけるキャリア移動の様子を解析した。この結果からあるステップ数でキャリアがモデルを通過した割合 R_{pass} を算出し、これを用いて次式より SiC バルクを基準としたキャリアトラップ率 R_{trap} を定義した。

$$R_{trap} = R_{pass}(\text{SiC バルク}) / R_{pass} \quad (1)$$

【結果】 図 2 に量子化学計算により得られた部分状態密度を示す。図 2(a)は QD モデル全体の部分状態密度、図 2(b)は (a)のうち QD 部分のみに注目した部分状態密度である。図 2 の結果から、QD モデルにおいて SiC の禁制帯中に準位がみられ、この準位は QD の導入によりできたことがわかる。このことから、禁制帯中の準位は QD 界面における結合欠陥によるものであると考えられる。

次に、量子化学計算より得られた電子状態をもとに、キャリア移動シミュレーションを行った。図 3 に注入されたキャリアの存在確率が高いメッシュの分布を示す。この結果から、電子・ホールは共に QD/バルク界面付近に多く分布しており、欠陥による界面準位がキャリアトラップとして作用している様子がみられた。このことから、QD/バルク界面構造に起因する準位が再結合中心になり、変換効率低下の要因であると考えられる。

また、式(1)より各モデルでの R_{trap} を推算した。その値は SiC バルクを 1.0 とする相対値として、QD モデルは 2.064、点欠陥モデルは 21.95 と点欠陥のほうが約 10 倍高い値となった。この結果から、それぞれの欠陥構造がバルク内に存在した場合、点欠陥のほうがキャリアトラップへ大きな影響を与えることが示唆された。

[1] A.S. Brown *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **94** 6150 (2003)

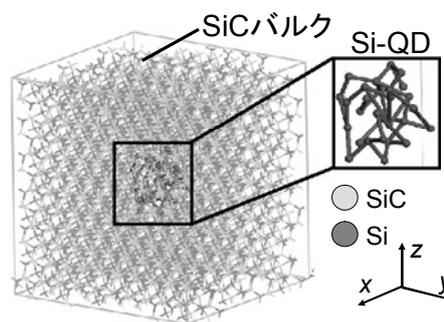


図 1 計算に用いた量子ドット(QD)モデル

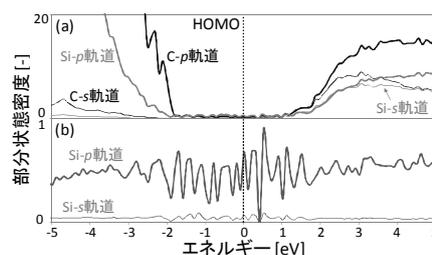


図 2 QD モデルの部分状態密度:(a)モデル全体,(b)Si-QD 部分のみ

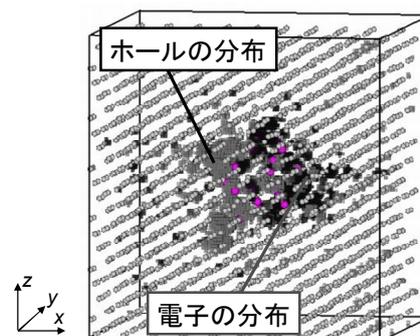


図 3 QD モデルでの注入された電子・ホールの分布