

## Si 量子ドットの表面構造を考慮したキャリア増倍効果の計算化学的評価

○広瀬 祥<sup>1</sup>, 南雲 亮<sup>2</sup>, 三浦隆治<sup>1</sup>, 鈴木 愛<sup>2</sup>, 坪井秀行<sup>1</sup>,  
畠山 望<sup>1</sup>, 高羽洋充<sup>1</sup>, 宮本 明<sup>2,1</sup>

<sup>1</sup> 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)

<sup>2</sup> 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(QD)太陽電池の変換効率を向上させる方法の1つとして、キャリア増倍効果が注目されている<sup>1)</sup>。この効果は、高エネルギーに励起された電子が緩和される際に、別の電子を励起する効果であり、QDのバンド構造に大きく影響されると示唆されている<sup>2)</sup>。QD太陽電池ではQDはバルク半導体中に埋め込まれており、周囲の半導体との結合状態によってQDのバンド構造が変化すると考えられる。本研究では、半導体の種類によって異なるQD表面の結合状態を末端基の違いによって考慮し、量子化学計算を用いて表面末端結合がバンド構造やキャリア増倍の速度( $R_{CM}$ )に与える影響について検討した。

【方法】計算には図1に示す直径1 nmのSi-QDモデルを用いた。図1(a)はH末端モデル、(b)はOH末端モデルであり、末端基を変化させることで、QD表面の影響を考慮した。これらのモデルに対し量子化学計算を行い、表面構造がバンド構造に与える影響を比較した。また、各モデルについて $R_{CM}$ を算出し、キャリア増倍に有利な構造について検討した。 $R_{CM}$ は次の式より算出した。

$$R_{CM} = \frac{\Gamma}{\hbar} \sum \frac{|\langle i | \Delta H | f_n \rangle|^2}{(E_{f_n} - E_i)^2 + (\Gamma/2)^2}$$

ここで、 $\Gamma$ はフォノンの影響に対するパラメータであり、 $|i\rangle$ ,  $|f_n\rangle$ はそれぞれ始状態、終状態を表している。また、 $E$ は固有エネルギー、 $\Delta H$ はクーロン相互作用である。

【結果】図2(a)にH末端モデル、(b)にOH末端モデルについて計算した部分状態密度(PDOS)を示した。H末端モデルでは、バンドギャップは3.87 eVと大きく、エネルギー準位も離散化していた。一方、OH末端モデルではバンドギャップは1.55 eVであり、エネルギー準位はH末端の場合と比べより連続的になっていた。このことから、QDのバンド構造は表面構造の違いにより大きな影響を受けるということが示唆された。このようなバンド構造の変化はキャリア増倍効果に大きく影響すると考えられる。そこで次に $R_{CM}$ を算出し、よりキャリア増倍に有利な構造について検討を行った。この詳細については当日報告する。

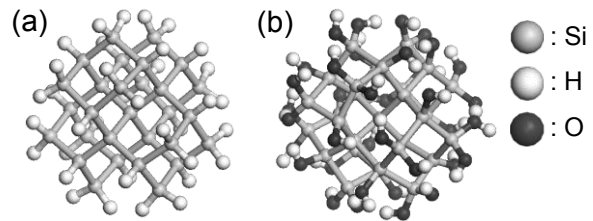


図1 Si量子ドットモデル(a)H末端モデル  $Si_{29}H_{36}$  (b)OH末端モデル  $Si_{29}(OH)_{36}$

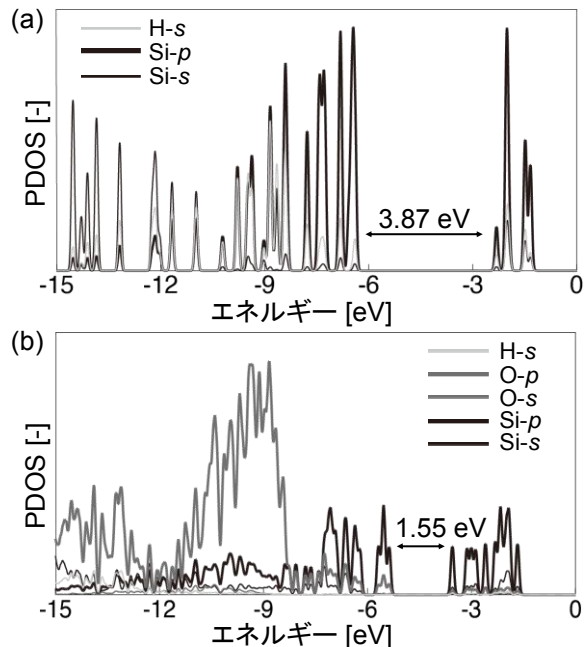


図2 各モデルの部分状態密度 (a)H末端モデル (b)OH末端モデル

1) R. D. Schaller *et al.*, *Nature Physics*, **1** (2005) 189  
2) L-W. Wang *et al.*, *Phys. Rev. B*, **91** (2003) 056404