



# 平成 28 年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」 調査研究報告書(公開版)

【研究題目】 強磁場計測とデータ解析技術の融合によるエネルギーデバイス  
材料評価システムの確立に向けた基礎調査研究

【整理番号】 TK16-29

【代表機関】 物質・材料研究機構

【調査研究代表者（氏名、連絡先 TEL & Mail）】

今中 康貴 029-863-5413, IMANAKA.Yasutaka@nims.go.jp

【TIA 内連携機関：連携機関代表者】

産業総合技術研究所 柴田 肇

筑波大学 黒田 眞司

東京大学 秋山 了太

【TIA 外連携機関】

埼玉大学

【報告書作成者】 今中 康貴 【報告書作成年月日】 平成 29 年 3 月 31 日

【連携推進（具体的な連携推進活動内容とその活動の効果等）】

本調査研究において、計測を担当する物質・材料研究機構を中心に、エネルギーデバイスの材料の作成を担当する産業技術総合研究所、筑波大学、東京大学が試料を持ち寄り、強磁場計測する形で連携が推進された。

具体的には、産総研からは太陽光発電関連物質（酸化亜鉛試料と CZTS 試料）、筑波大学、東京大学からトポロジカル結晶絶縁体 SnTe、更には物質・材料研究機構は CdTe 二次元試料について、物質・材料研究機構の強磁場施設にて、強磁場輸送測定を行った。また計測した精密データ（磁気抵抗、ホール抵抗）を使つてのキャリアの種類、濃度、移動度のパラメータを解析するプログラムに関する調査を産総研が中心となり行った。

また計測だけでなく、学生も含めた研究会を開催し、様々な議論を行うことで、相互理解がより深まり、極めて実効的な連携協力関係を構築することができた。

【調査研究内容（実験等中心に背景・課題と実行された課題解決の内容と結果）】

半導体デバイスにおいて、特に複数種のキャリアが伝導を担う場合、それぞれのキャリアの移動度や濃度、極性に関する情報を分離することは重要である。実際に太陽光発電デバイスでは多数キャリアではなく少数キャリアの特性が、トポロジカル絶縁体ではバルクではなく表面キャリアの特性が重要で、その特性のみを切り出して評価するために、これまで試料品質や計測技術の向上の両面から努力が続けられている。

その問題に対して本調査研究では、1：光照射下での強磁場輸送計測法の確立、2：高品質試料の作成と共に、3：コンピュータープログラム使つた解析による複数種のキャリア特性の自動抽出する手法について調査を行った。

まず強磁場輸送計測に関しては、光を照射しながら計測できるように、光ファイバを導入したプローブの開発を行った。それを利用し、ZnO、CZTS、SnTe、CdTe といった各種半導体の

計測を物質・材料研究機構の強磁場磁石を用いて行い、作成した光照射型輸送計測プローブが強磁場極低温下の測定で十分に機能することを確認した。

次世代太陽電池材料 CZTS については非常に高抵抗で、光を照射した場合としない場合での電気抵抗の差が十分に現れ、光を照射しながら強磁場まで測定を行うという初期の目的については達成することができた。しかしながらより低温で精密な測定を行うためには試料側の再調整が必要であり、今後新たな試料を系統的に測定していく予定である。

トポロジカル絶縁体 SnTe では、バルクキャリアの寄与がなるべく小さくなるように、分子線エピタキシー法でキャリア数を制御された試料について、25 テスラまでの強磁場までの輸送測定を行った。現在までに表面電子による低磁場領域で弱反局在の振る舞いを観測し、強磁場領域での量子振動に関しては非常に僅かながらその兆候が得られてきたところである。今後は更に高品質の試料の測定を行っていく予定である。

最後に電気伝導度の磁場依存性から逆問題を解くことによりモビリティスペクトラムを得るためのコンピュータープログラムを使った解析を進めた。2 種類の手法により解析を進め、ある程度移動度が高く、キャリア種も少ない場合には物理的に正しい移動度スペクトルが得られることが分かった。移動度が低く、複数の電子、正孔伝導メカニズムを持つ系への適用可能性については今後の課題である。

#### 論文発表

- K. Takehana, Y. Imanaka *et al.*, "Logarithmic temperature dependence of resistivity in CVD graphene, *Curr. Appl. Phys.* 17, 474 (2017).
- R. Ishikawa, T. Yamaguchi, Y. Ohtaki, R. Akiyama, S. Kuroda, "Thin film growth of a topological crystal insulator SnTe on the CdTe (111) surface by molecular beam epitaxy", *J. Cryst. Growth* 453, 124-129 (2016).
- Y. K. Wakabayashi, R. Akiyama, Y. Takeda, M. Horio, G. Shibata, S. Sakamoto, Y. Ban, Y. Saitoh, H. Yamagami, A. Fujimori, M. Tanaka, and S. Ohya, *Physical Review B* 95, 014417 (2017).
- S. Kim, K.M. Kim, H. Tampo, H. Shibata, S. Niki, "Improvement of voltage deficit of Ge-incorporated kesterite solar cell with 12.3% conversion efficiency", *Appl. Phys. Express* 9, 202301 (2016).
- A. Nakane, H. Tampo, M. Tammakoshi, S. Fujimoto, K.M. Kim, S. Kim, H. Shibata, S. Niki, and H. Fujiwara, "Quantitative determination of optical and recombination losses in thin-film photovoltaic devices based on external quantum efficiency analysis", *J. Appl. Phys.* 120, 064505 (2016).

#### 学会発表

- 今中康貴、「高移動度 CdTe 量子ホール系における強磁場発光測定」、日本物理学会第 72 回年次大会
- 山口智也, 大滝祐輔, 石川諒, 黒田眞司, D. Fan, 秋山了太, 長谷川修司, 宮本幸治, 佐藤仁, 木村昭夫、「トポロジカル結晶絶縁体 (Pb, Sn) Te 薄膜の角度分解光電子分光による表面状態観察」、日本物理学会 2016 年秋季大会
- 大滝祐輔, 山口智也, 石川諒, 黒田眞司, 中西亮介, D. Fan, 秋山了太, 長谷川修司, 宮本幸治, 佐藤仁, 木村昭夫、「トポロジカル結晶絶縁体 (Pb, Sn) Te 薄膜のキャリア密度制御および表面状態観察」日本物理学会 第 72 回年次大会
- Ryota Akiyama *et al.*, Shubnikov-de Haas oscillations in n and p-type topological insulator  $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$  flakes, 1.06, NTTI2016 and NGS 17, Wuerzburg University (24 - 29 Jul. 2016)
- 秋山了太、「Properties of topological insulators probed by a magnetic field」、東京大学物性研究所短期研究会「強磁場コラボラトリー、国際協力と強磁場科学」(招待講演)、2016年6月23日、東京大学物性研究所
- 反保衆志, 金 江玟, 金 信浩, 柴田 肇, 仁木 栄「Cu<sub>2</sub>ZnSnSe<sub>4</sub>太陽電池におけるNa添加効果(2)」、第77回応用物理学会秋季学術講演会(2016年9月)
- 反保衆志, 金 江玟, 金 信浩, 柴田 肇, 仁木 栄「CZTSe太陽電池の表面処理効果」、第64回応用物理学会春季学術講演会(2017年3月)

#### 【今後の予定】

計測手段、試料作成、解析プログラムの調査とそれぞれが今回の調査研究で格段に進んでおり、今後更に連携を深めて定期的に研究会などを行いたいと考えている。また本連携をきっかけにして科研費などの外部予算の獲得も今後とも目指す予定である。なお解析プログラムの効率的な開発に関しては、理論、計算の研究者との連携も必要であり、TIA 連携の 5 機関にこだわらず、連携可能な適切な研究者に入っていただくことを予定している。