

【背景】 MAPbI₃ ペロブスカイト(Pvk)太陽電池は 2009 年に宮坂教授らによって色素増感太陽電池の色素として使用されて以降、変換効率の急速な向上で注目されている。現在主流の Pvk 太陽電池は電子輸送層(ETL)と正孔輸送層(HTL)が光吸収を行う Pvk 層を挟んだ構造である。MAPbI₃-pvk はバンドギャップが 1.55 eV で理論最大変換効率をもたらすバンドギャップ 1.4 eV に近く、直接遷移型で吸収係数も大きいので太陽電池の材料として適している。また、溶液の塗布による低温、低コスト成膜が可能であることからフレキシブルへの応用も期待されているが、再現性が応用・製品化への課題となっている。これまでばらつきの原因となる Pvk 層のピンホールを減らすために成膜方法などの研究が進められており、中でも Pvk 溶液塗布後のアニールは結晶化プロセスに大きな影響を与える因子である。本研究ではアニール温度に着目し光電変換効率と再現性に与える影響を調査した。

【実験内容】 本研究では上記の主流の構造を用いた太陽電池を作製した。陰極側からフッ素ドープ酸化スズ/酸化チタン緻密膜/多孔質酸化チタン/Pvk 層/spiro-OMeTAD(HTL)/金を成膜した。MAPbI₃ 溶液をスピンドットした後のアニール温度を 90°C~110°C まで変化させ太陽電池を作製し、光電変換効率の測定を行った。また、同条件で合成石英基板上に成膜したペロブスカイト層を分光光度計による透過率・反射率測定、微小角入射 X 線回折、電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM)によって物性の評価を行った。

【実験結果・考察】 図 1 にアニール温度毎の代表的な太陽電池 I-V 曲線を示す。100°C で一番高い 11.8% の光電変換効率を得られた。一方で 90°C では短絡電流密度(J_{SC})が高いものの直線的に減少するため曲線因子が悪く、110°C では曲線因子は良いものの J_{SC}、開放端電圧が低いため約半分の変換効率となった。FE-SEM を用いて Pvk 表面を観察すると 90°C、110°C では結晶粒が小さくピンホールが見られるのに対し、100°C ではピンホールがなく長辺約 300nm の大きな粒経を持つことが確認できた(図 2)。図 3 に光電変換効率のばらつきをまとめた図を示す。100°C でアニール処理を行うことで 5% の平均変換効率の向上と、ばらつきを半分に抑制できていることがわかる。また、110°C でのアニール処理では効率の低下とばらつきの増大が見られ、Pvk 膜の結晶性がわずかなアニール温度の差によって変化し、光電変換効率と再現性に影響を与えることを明らかにした。

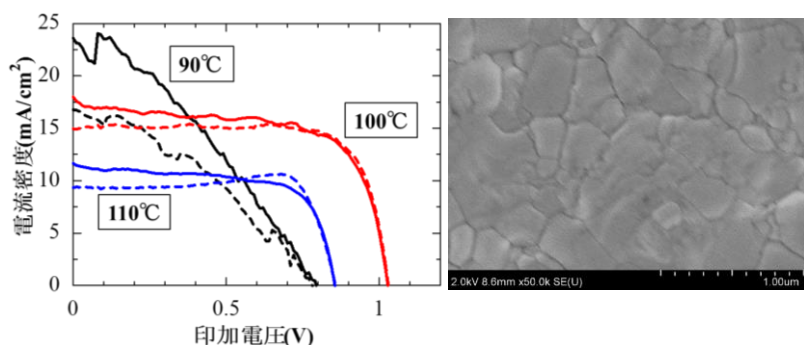


図 1 I-V 曲線の Pvk アニール温度による影響

図 2 100°C アニール Pvk 表面 SEM 画像

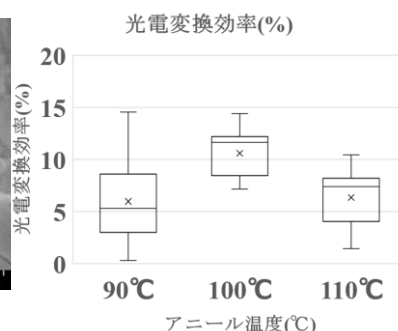


図 3 光電変換効率のばらつき

【参考文献】

- [1] D. Liu, et al., *RSC Adv.*, 6, (2016) 51279.
- [2] J. Im, et al., *Nat Nanotechnol.*, Vol 9, (2014) 927-932.