

氏 名	馬 騰
所属機関	東北大学材料科学高等研究所
研究題目	バックコンタクト型ペロブスカイト太陽電池の開発

1. 研究の目的

有機金属ハライドペロブスカイト材料は高い吸光率と高いキャリア移動度を持ち、溶液プロセスで簡便に成膜できるため、幅広い応用が可能であり、現在様々な応用法が検討されている。その中で最も注目されている応用が太陽電池である。最近、ペロブスカイト太陽電池で変換効率 24.2%という実施例も報告されている。現在幅広く用いられているペロブスカイト太陽電池の構造は、縦型ペロブスカイト太陽電池である。しかし、この構造ではいくつか問題がある。まず、光がガラス、透明電極、チャージ輸送層を通過する際に反射と吸収を起こり、ペロブスカイト層に到達するまでの光損失は 10%以上になる。また、透明電極付き基板は高価のため、低コスト化の障害になっている。更に、ペロブスカイト層にピンホールがあると、HTL と ETL 直接コンタクトしリークが生じる。面積が増大するとピンホールの発生確率が増大するため大面積化が難しい。

上記 3 課題を解決するために、我々は透明電極を必要としないバックコンタクト構造を有する新奇な高効率ペロブスカイト太陽電池の開発とその動作特性の解明を目的とした。この構造は、陰極電極と陽極電極の両方を光吸収層の片側に配置するために、高い光利用効率、低コスト、高安定性などの利点を有し、なおかつ太陽電池の大面積化も可能にする。本研究では、我々が開発した独自の成膜方法を用いて、透明電極フリー・ペロブスカイト太陽電池の作製と性能評価を行い、ペロブスカイト太陽電池の高効率・低コスト化を目指した。

2. 研究の内容(手法、経過、評価など)

研究期間では、提案するバックコンタクト型太陽電池作製の基盤となる、(1) ペロブスカイト大結晶の成長メカニズムの解明と成膜条件の最適化、(2) バックコンタクト基板の作製方法の確立を行って、(3) 実際にバックコンタクト型太陽電池の作製を行うとともに、その性能評価を性能向上の取り組みを行った。

(1)ペロブスカイト大結晶の成長メカニズムの解明と成膜条件の最適化

バックコンタクト型ペロブスカイト太陽電池では、ペロブスカイト層の質と結晶サイズが太陽電池の性能に強く関連している。結晶のサイズが電極幅プラス電極間隔の値より小さいと、電荷輸送が粒界の影響を強く受けるため、均一な大結晶を有するペロブスカイト薄膜を作ることが必須である。図 1 示したように、我々は新しい結晶形成法を提案し、一様性が高く、かつ結晶性の良いペロブスカイト結晶層を形成することに成功した。開発した新手法を用いると、従来法に比べ格段に大きい結晶粒のペロブスカイト層を形成できることが確かめられた。しかし、高温アニールする時、基板とペロブスカイト層の熱膨張率が違うので、界面に応力が生み、電荷輸送の効率が影響されることがわかった。この問題を解決するために、我々はこれまでの研究結果と経験に基づいて、大結晶の形成に重要なファクターを取り出し、アニール雰囲気の内容を調整し、大結晶と膜の均一性を保つながら、アニール温度を 200 °C から 150 °C まで下がることのできた（論文執筆中）。

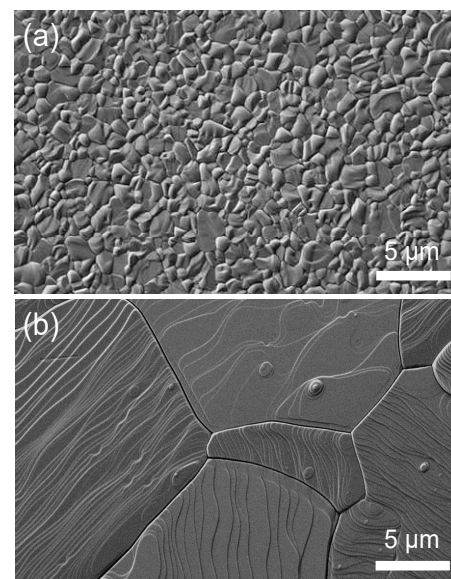


図 1. (a)従来のペロブスカイト成膜方法と (b)我々が提案した成膜方法の比較。

2. 研究の内容(続き)(書ききれない場合には、同一形態のページを追加しても結構です)

(2)バックコンタクト基板の作製方法の確立

バックコンタクト構造用電極は仕事関数だけで決まらず、材料の微細加工性も考慮する必要がある。まず材料として、申請者が成膜と微細加工の経験がある、Ti と Ni を検討する。これらの材料表面を酸化すると、 TiO_2 と NiO の薄膜が形成できる。この二つの金属酸化物は、それぞれ縦型ペロブスカイト太陽電池で多用されている空孔輸送層 (HTL) と電子輸送層 (ETL) になる。電極基板の加工プロセスを図2に示す。まずガラス基板上に、Ni 薄膜は DC スパッタで成膜し、 SiO_2 とを RF スパッタで成膜した後、Ti 薄膜は DC スパッタ法により形成した。多元スパッタ装置を利用し、真空一貫で上述4種類の膜を成膜できた。その後、フォトリソグラフィを用いて、電極基板の微細加工を行った。Ni と SiO_2 膜を部分的にエッチングした後、空气中で Ti と Ni の表面を酸化し、電極基板が完成した。当初は、基板/Ti/ SiO_2 /Ni の構造で計画していたが、Ni エッチング時の均一性と SiO_2 エッチング時のオーバーエッチングなどの問題があり、図2のような構造に変更した。

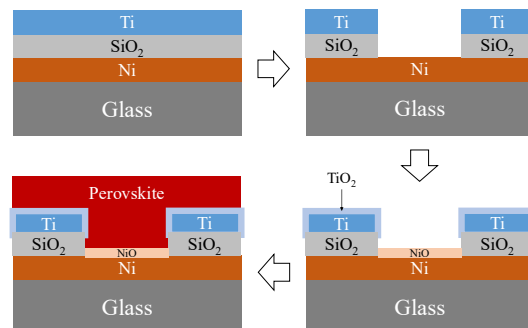


図2. バックコンタクト構造用電極基板の作成プロセス

(3)バックコンタクト基板の構造の最適化と実証

バックコンタクト太陽電池の高効率を達成するためには、ペロブスカイト層の厚さ、電極の幅と間隔を細かく調整する必要がある。しかし、電極の作製に時間がかかるため、すべてのパラメータの組み合わせを実験で検証することが不可能である。そこで、申請者が使用経験があるシミュレーションソフトウェア Silvaco TCAD を用いて、太陽電池構造の最適化を行った。図3示したように、電極の幅が大きくなると、太陽電池の電流密度が下がってしまい、変換効率の低下につながる。しかし、電極の幅が $5\mu\text{m}$ であれば、変換効率にの影響が少なく、バックコンダクト構造の加工性も向上するので、 $5\mu\text{m}$ の幅でバックコンダクトペロブスカイト太陽電池を試作した。以上の結果をまとめ、国際誌 ACS Applied Energy Materials で発表した。

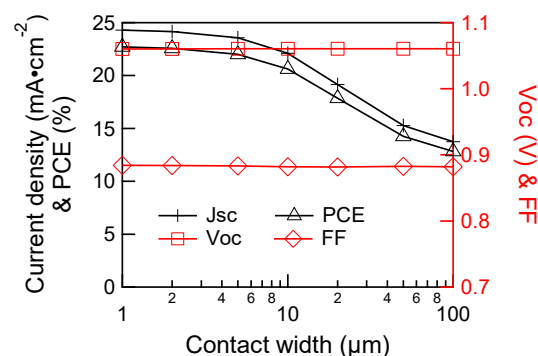


図3. バックコンタクトペロブスカイト太陽電池の電極幅とパフォーマンスの関係性

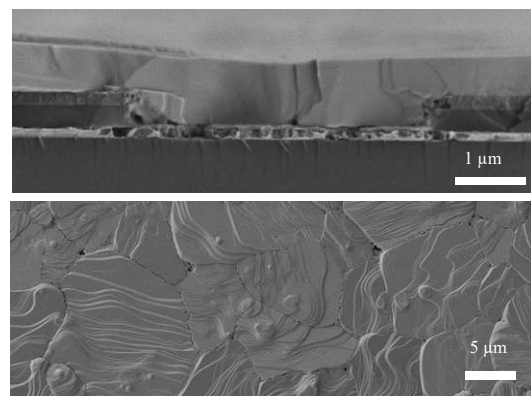


図4. 作製したバックコンタクトペロブスカイト太陽電池断面図と表面図

我々独創的成膜法を利用し、独自のバックコンタクト電極基板上で大結晶ペロブスカイト層を成膜すると、図4のようなバックコンダクト太陽電池を作成することを成功した。二つの電極が一つのペロブスカイト結晶が繋がっていることがわかった。光で生成した電荷が結晶粒界を通過せず、効率よくペロブスカイト結晶内で輸送することができた。太陽電池の変換効率は7.1%にも至った。これはバックコンタクト構造太陽電池の最高記録である(論文修正中)。

3. 研究の結論、今後の課題

本研究では、透明電極を必要としないバックコンタクト構造を有する新奇な高効率ペロブスカイト太陽電池の開発とその動作特性の解明を目的とした。この構造は、陰極電極と陽極電極の両方を光吸収層の片側に配置するために、高い光利用効率、低コスト、高安定性などの利点を有し、なおかつ太陽電池の大面积化も可能にする。一年間の研究を通して、ペロブスカイト大結晶の成長メカニズムを理解する上で、バックコンタクト基板の作製方法の確立し、バックコンタクト型太陽電池の作製に成功した。以上の結果を通して、バックコンタクト型太陽電池の有用性の評価とデバイス応用の方向性を明確にした。バックコンダクトペロブスカイト太陽電池の変換効率を更に向上するために、界面の最適化、バックコンダクト電極の抵抗の低減などの問題を解決する必要がある。本研究助成が終わったが、これからもバックコンダクトペロブスカイト太陽電池の実用化に向けて、研究を進めていく。

4. 成果の価値(とくに判りやすく書いて下さい)

4. 1. 社会的価値

我々の独創的な成膜法を使って、新規提案するバックコンタクト構造太陽電池が実現し、ペロブスカイト太陽電池の更なる高効率、高安定性、低コストと大面積化が可能となり、ペロブスカイト太陽電池の実用化を加速すると期待される。再生可能エネルギーである太陽光がペロブスカイト太陽電池により、効率よく使われるようになれば、二酸化炭素の排出量をより減らすことができ地球環境保全に役立つ。また、製造や廃棄にかかるエネルギーを減らすことができる点も地球環境にやさしいと言える。

4. 2. 学術的価値

バックコンタクト構造を有するペロブスカイト太陽電池はまだ注目度が低い。この研究を通して、バックコンタクト構造の優位性を示し、各国の研究者から注目を集めることが期待される。更に、大結晶ペロブスカイト薄膜層は、太陽電池ばかりでなく、光検出器など各種センサーにも応用できると期待される。

4. 3. 成果論文(本研究で得られた論文等を年代順に書いて下さい。未発表のものは公表予定を書いて下さい)

論文：

1. Teng Ma, Qingwen Song, Daisuke Tadaki, Michio Niwano, Ayumi Hirano-Iwata, Unveil the Full Potential of Integrated-Back-Contact Perovskite Solar Cells Using Numerical Simulation. *ACS Applied Energy Materials*, 1, 970-975 (2018).
2. Teng Ma, Daisuke Tadaki, Michio Niwano, Ayumi Hirano-Iwata, The effect of grain boundaries to the performance of integrated-back-contact perovskite solar cells. *Revising* (2019).

学会発表：

3. Teng Ma, Daisuke Tadaki, Michio Niwano, Ayumi Hirano-Iwata, The full potential of integrated-back-contacted perovskite solar cells unveiled by numerical simulation technique. 2018 MRS Spring Meeting, Phoenix, USA (2018).
4. Teng Ma, Boosting the performance of the perovskite solar cells by structural optimization. 2018 E-MRS Spring Meeting, Strasbourg, France (2018).
5. Teng Ma, Advantages of interdigitated structure over traditional sandwich structure for highly efficient perovskite solar cells. 12th NHSC, Shenzhen, China (2018).
6. Teng Ma, Structural evolution for highly efficient perovskite solar cells. IPEROP-19, Kyoto, Japan (2019).
7. Teng Ma, Lateral structure for stable and highly efficient perovskite photovoltaics. 2019 E-MRS Spring Meeting, Nice, France (2019). **Selected as “Best Poster award”.**