

一般セッション(口頭講演) | CS コードシェアセッション:【CS.13】 12.5 有機・ハイブリッド太陽電池、13.9 化合物太陽電池、16.3 シリコン系太陽電池のコードシェア

■ 2023年9月21日(木) 9:00 ~ 11:45 | 会場 D903 (TKP)

[21a-D903-1~10] CS.13 12.5 有機・ハイブリッド太陽電池、13.9 化合物太陽電池、16.3 シリコン系太陽電池のコードシェアセッション

白井 康裕(物材機構)、金子 竜二(エネコートテクノロジーズ)

9:00 ~ 9:15

[21a-D903-1] 多接合化へ向けたワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池の構築

○栗井 文康¹、樗木 悠亮²、鯉田 崇³、Giteau Maxime⁴、Collin Stéphane⁴、Guillemoles Jean-François⁵、岡田 至崇²、久保 貴哉²、瀬川 浩司^{1,2} (1.東大総、2.東大先端研、3.産総研、4.CNRS-C2N、5.CNRS-IPVF)

◆ 英語発表

9:15 ~ 9:30

[21a-D903-2] All perovskite tandem solar cells employing indium zinc oxide interconnect

○(PC)Gaurav Kapil^{1,2}, Yasuhiro Fujiwara¹, Qing Shen¹, Hiroshi Segawa², Shuzi Hayase¹ (1.Uni. of Electr.Comm., 2.Uni. of Tokyo)

9:30 ~ 9:45

[21a-D903-3] ワイドギャップペロブスカイトにおける組成・足場材料と電荷輸送特性との相関解明

○西久保 綾佑^{1,2}、Park Yieon¹、佐伯 昭紀^{1,2} (1.阪大院工、2.阪大 ICS-OTRI)

9:45 ~ 10:00

[21a-D903-4] 高電圧-逆構造型ワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池の開発

○沼田 陽平¹、柴山 直之²、宮坂 力^{2,1} (1.東大先端研、2.桐蔭大院工)

◆ 奨励賞エントリー

10:00 ~ 10:15

[21a-D903-5] 時空間分解発光分光による混晶ハライドペロブスカイト薄膜の光誘起相分離の研究

○(M2)大穀 裕介¹、山田 琢允¹、嶋崎 愛¹、中村 智也¹、金子 竜二¹、廣理 英基¹、若宮 淳志¹、金光 義彦¹ (1.京大化研)

◆ 奨励賞エントリー ◆ 英語発表

10:30 ~ 10:45

[21a-D903-6] Influence of Substrates on CsPbBr₃ Perovskite Deposited by Solution Process, a Step to Photon Up-conversion Solar Cells.

○(D)Hambalee Mahamu¹, Yoshida Koichiro¹, Shigeo Asahi¹, Takashi Kita¹ (1.Kobe Univ.)

10:45 ~ 11:00

[21a-D903-7] MPATによりSiウエハ表面に形成したテクスチャへのペロブスカイト成膜

○Yang Pengyu¹、Liu Peng²、Huynh Thi Cam Tu¹、Md. Shahiduzzaman²、當摩 哲也²、大平 圭介¹ (1.北陸先端大、2.金沢大)

11:00 ~ 11:15

[21a-D903-8] アニール処理された MoO_3 膜を有するペロブスカイト太陽電池を用いた水素生成検討

○藤田 凌太郎¹、川鍋 凜¹、菊池 優大¹、久恒 圭人¹、駒澤 雄飛¹、宮島 晋介²、村上 拓郎³、古郷 敦史³、内田 史朗¹ (1.千葉工大、2.東工大、3.産総研)

◆ 英語発表

11:15 ~ 11:30

[21a-D903-9] Investigation of the Mechanisms behind Enhanced Efficiency and Thermal Stability in Tin-Lead (SnPb) Perovskite Solar Cells

○(P)Shahrir Razey Sahamir¹, Gaurav Kapil¹, Takeru Bessho², Hiroshi Segawa², Qing Shen¹, Shuzi Hayase¹ (1.Univ. of Electro-com, 2.Univ. of Tokyo)

◆ 英語発表

11:30 ~ 11:45

[21a-D903-10] Light illumination stability improvement for Sn-Pb mixed perovskite solar cells through surface modification

○(DC)Yulu He^{1,2}, Md. Emrul Kayesh¹, Muhammad Monirul Islam², Wasif Chowdhury¹, Towhid Hossain Chowdhury¹, Md. Abdul Karim¹, Siliang Cao^{1,2}, Takeaki Sakurai², Ashraful Islam¹ (1.NIMS, 2.Univ. of Tsukuba)

多接合化へ向けたワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池の構築

Wide-bandgap Perovskite Solar Cells for Multi-junction Solar Cells

東大総¹, 東大先端研², 産総研³, CNRS-C2N⁴, CNRS-IPVF⁵ ◯栗井 文康¹, 橋本 悠亮², 鯉田 崇³,
Maxime Giteau⁴, Stéphane Collin⁴, Jean-François Guillemoles⁵, 岡田 至崇², 久保 貴哉², 瀬川 浩司^{1,2}

UTokyo Arts & Sci.¹, UTokyo RCAST², AIST³, CNRS-C2N⁴, CNRS-IPVF⁵ ◯Fumiyasu Awai¹,
Yusuke Ohteki², Takashi Koida³, Maxime Giteau⁴, Stéphane Collin⁴, Jean-François Guillemoles⁵,
Yoshitaka Okada², Takaya Kubo², Hiroshi Segawa^{1,2}

E-mail: awai@dsc.rcast.u-tokyo.ac.jp

ペロブスカイト太陽電池は次世代太陽電池の一つとして注目を集めており、1Sun 照射下で約 26%の高い光電変換が報告されている。また、バンドギャップの制御が容易であることからタンデム太陽電池のサブセルとしても活用されており、シリコン太陽電池や色素増感太陽電池など様々な太陽電池との組み合わせが報告されている。本研究では、ペロブスカイト - GaAs タンデム太陽電池 (Fig.1) へ向けたワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池を構築するために、光学シミュレーションによって最適なバンドギャップを算出すると共に、タンデム太陽電池の試作を行ったので報告する。

光学シミュレーションは、MATLAB®上のプログラムにおいて行った。Fig.1 に示すように GaAs ボトムセル p 層上に広帯域透過性の透明導電膜 (水素ドープ In_2O_3 : IOH) を介してペロブスカイトトップセル (電子輸送層(TiO_2) / ペロブスカイト層 / ホール輸送層 (spiro-MeOTAD) / 透明導電膜(IOH)) を積層する構造をモデルとした。Fig.2 に光学シミュレーションによって算出された各層の吸収および透過・反射の割合を示す。ここに示した吸収率に 1SUN(AM1.5G)での各波長の光子数をかけ合わせて積算することで、ペロブスカイト部分および GaAs 部分での短絡電流密度 (J_{sc}) を求めた。この時、内部量子収率を 95%と仮定した。Fig.3 に示すように 2.0eV 程度のバンドギャップにおいて電流マッチングがとれることが分かった。

ペロブスカイトセルの作製においては、ホルムアミジニウム(FA)、メチルアンモニウム (MA)、およびカリウム (K) を用いたトリプルカチオン型のペロブスカイト ($\text{FA}_{0.81}\text{MA}_{0.14}\text{K}_{0.05}\text{PbI}_x\text{Br}_{3-x}$) を用いた。ヨウ素(I)と臭素(Br)の比率(x)を変えることでバンドギャップを、1.76 eV ($x=1.75$) から 2.09 eV ($x=0.05$)の間で調整して作製した太陽電池の J_{sc} は、シミュレーション結果と同様な傾向を示した。これらのセルを用いてペロブスカイト - GaAs タンデムセルの作製・評価も行った。

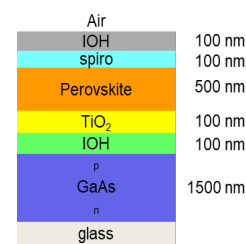


Fig. 1. Tandem solar cell structure

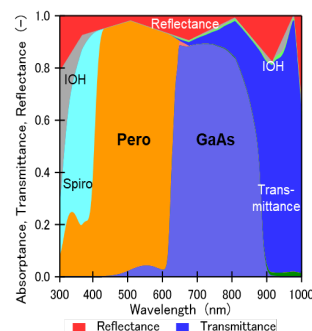


Fig. 2. Absorption of each layer in perovskite-GaAs tandem solar cell (Corresponding to the J_{sc} matching conditions for perovskite and GaAs cells)

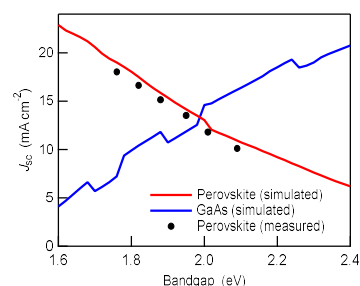


Fig. 3. Simulated and measured J_{sc} depending on bandgap

All perovskite tandem solar cells employing indium zinc oxide interconnect

The University of Electro-Communications¹, The University of Tokyo²,

°Gaurav Kapil^{1,2}, Yasuhiro Fujiwara¹, Qing Shen¹, Hiroshi Segawa², Shuzi Hayase¹

E-mail: gauarvkapil.ece@gmail.com

Introduction

All perovskite tandem solar cells (APTSCs) are now showing power conversion efficiencies (PCEs) more than the highest reported single-junction perovskite and silicon solar cells [1,2]. The rapid rise in the performance of APTSC can be ascribed to the improvement in the performances of both top (wide bandgap, WBG) and bottom (narrow bandgap, NBG) cells. Recently, the focus has been on the reduction of halide segregation and improvement of open circuit voltage (Voc) in WBG cells which led to an immense increase in Voc of APTSC to 2.2V [2,3]. We noticed that most of the recent reports on efficient APTSCs utilize SnOx (prepared by atomic layer deposition) coated with Au (1-2nm) as an interlayer. However, the optical loss due to the use of Au nanoparticles can't be ignored. Therefore, in this work, we focused on the preparation of indium oxide doped with zinc oxide (IZO) as an interconnecting layer in place of Au nanoparticles to reduce the optical loss and improvement of facile hole and electron recombination at the SnOx layer.

Results and discussion

We obtained PCE of 26.39% for APTSC with a Voc of 1.94V, Jsc of 17.18 mA/cm², and FF of 0.79. APTSC employing Au nanoparticle interlayer showed an inferior PCE of 22.32% with a Voc of 1.84V, Jsc of 15.4 mA/cm², and FF of 0.79. Moreover, in this work, we will support the increase in device performance with the use of different IZO interconnect by evaluating the carrier mobility, diffusion length, charge transport time, and recombination time.

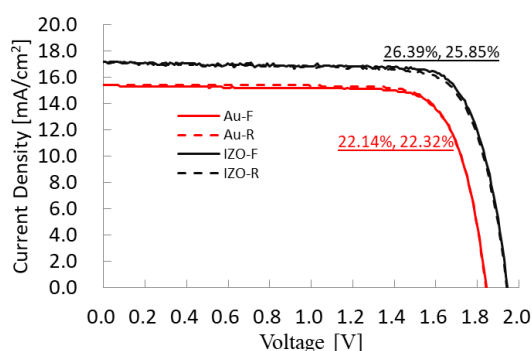


Figure1. Current-voltage characteristics of different solar cells fabricated.

References

1. <https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html>, NREL chart accessed on 6th June.
2. Q. Jiang and K. Zhu et al, Compositional texture engineering for highly stable wide-bandgap perovskite solar cells, *Science*, 378, 1295–1300 (2022).
3. H. Chen and E. H. Sargent et al, Regulating surface potential maximizes voltage in all-perovskite tandems, *Nature*, 613, 676–681 (2023).

ワイドギャップペロブスカイトにおける組成・足場材料と電荷輸送特性との相関解明 Compositional and Underlayer Dependence on Crystallinity and Charge Dynamics of Lead Halide Perovskite

阪大院工¹, 阪大 ICS-OTRI², °西久保 綾佑^{1,2}, Yieon Park¹, 佐伯 昭紀^{1,2}

Osaka Univ.¹, Osaka U. ICS-OTRI², °Ryosuke Nishikubo^{1,2}, Yieon Park¹, Akinori Saeki^{1,2}

E-mail: nishikubo@chem.eng.osaka-u.ac.jp

鉛ハライドペロブスカイト(LHP)は容易な溶液プロセスで作製できる一方で、その成膜過程には組成(A サイトやX サイトの組み合わせ)や添加剤、足場材料など様々な要素が影響し、性能の変化につながる。中でも結晶性や欠陥量は薄膜の電荷移動度や再結合速度に直接的に影響し、素子性能が変化する原因となる。しかしながら、その組成や足場材料と基礎的な電荷ダイナミクスとの相関の包括的な理解には至っていない。そこで、多様な A,X サイト組成と異なる足場材料の組み合わせにおける結晶性や電荷ダイナミクスを、時間分解マイクロ波伝導度法(TRMC)などの手法を用いて包括的な傾向の解明を試みた。また、無機系添加剤の効果も新たに調査した。

全9通りのLHP組成(A サイト:FA_{0.8}MA_{0.15}CS_{0.05}, FA_{0.9}CS_{0.1}, FA_{0.85}MA_{0.15}, X サイト:Br 20%, 33%, 50%)、2種類の足場材料(順型:mp-TiO₂, 逆型:PTAA/PFN-Br)を用いて薄膜を作製し(図 a)、X線回折による結晶性評価やTRMCによる電荷ダイナミクス評価などを行った。X線回折では、mp-TiO₂を用いた場合3カチオン(FAMACs)が比較的大きい結晶子サイズを示したのに対し、PTAA/PFN-Brでは2カチオン(FACs)でやや高い結晶性が得られた。さらにTRMC評価では、いずれのBr比においても、mp-TiO₂/LHPsではFAMACsで、PTAA/PFN-Br/LHPsではFACsにおいて長いキャリア寿命が得られた(図 b)。実際これらの結果は素子性能とも一致することも明らかにした(図 c)。^[1]

また、近年有機系および無機系添加剤による性能向上効果が報告されている。本研究では無機系添加剤によるWG型ペロブスカイト素子性能向上効果の発見、および電荷ダイナミクス評価による機構解明も行った(図 c)。当日はこれらの結果および考察に関し詳細を述べる。

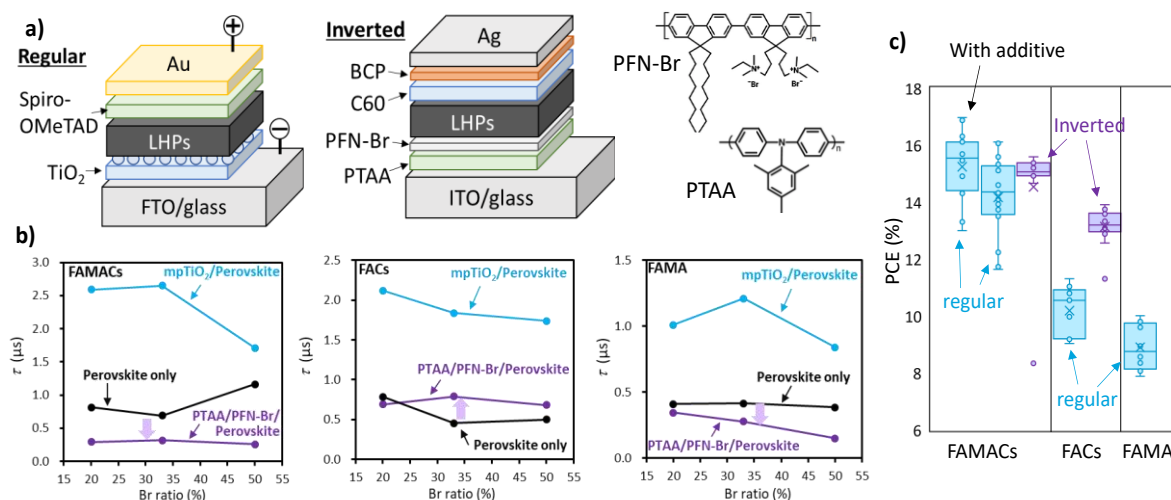


図 a) 素子構造および PTAA, PFN-Br の分子構造。b) 各 A, X サイトの組み合わせにおける TRMC 信号寿命 (τ)。c) Br33%における各 LHP の素子性能。

[1] Yieon Park, Ryosuke Nishikubo, Akinori Saeki *J. Photopolym. Sci. Technol.* **2023** accepted.

高電圧-逆構造型ワイドバンドギャップペロブスカイト太陽電池の開発

High-voltage inverted perovskite solar cells based on a wide-bandgap perovskite

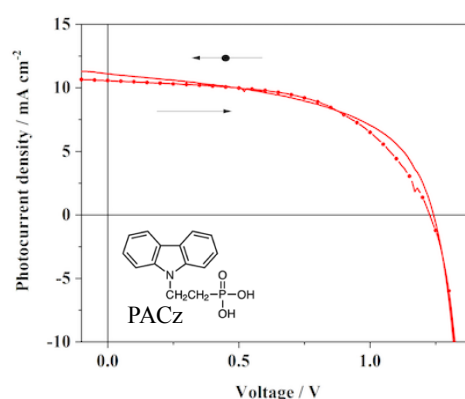
東大先端研¹, 桐蔭大院工² °沼田 陽平¹, 柴山 直之², 宮坂 力^{1,2}RCAST.¹, Toin Univ.², °Youhei Numata¹, Naoyuki Shibayama², Tsutomu Miyasaka^{1,2}

E-mail: ynumata@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

[序論] 近年、ペロブスカイト太陽電池の研究開発において、単セルでの高効率化と並んでタンデムセルの研究が精力的に進められている[1,2]。主な組み合わせとしてはシリコン-ペロブスカイト (Si-Pero)とペロブスカイト-ペロブスカイト(Pero-Pero)のタンデムがあり、それぞれにおいて固有の技術やノウハウが必要とされる。Pero-Pero においてはボトムセルに Pb-Sn 混合ペロブスカイトを用いた narrow-bandgap (NBG) cell が用いられる。これらのデバイスでは基本的に Sn(II)が酸化チタンや酸化スズなどの金属酸化物を用いたキャリア輸送層と相性が悪く、高効率を達成するためには下地に有機化合物である PEDOT:PSS や PACz を用いたいいわゆる逆型構造のセルを構築する必要がある。したがって自動的にトップセル (下層) である wide-bandgap (WBG) cell も逆型構造でなければならない、その高効率化、特に高電圧化に関する研究が進められている。

我々はこれまで高電圧を志向して、APbBr₃ や APbIBr₂ (A=カチオン種)などの臭素豊富組成を有する WBG ペロブスカイトを用いた太陽電池の開発を行ってきた[3,4]。最近ではややヨウ素の比率の多い組成を持つ WBG ペロブスカイトに対して添加剤を用いることで光安定性を高めることができることを報告した[5]。今回はデバイス構造を逆構造に変更した上で、更にカチオン種の追加や貧溶媒の工夫によって高効率化を行ったので報告する。

[結果と考察] ペロブスカイト層には FAPbIBr₂ を用い、チオシアン酸イオンと異なる置換基を有する、各種のアンモニウムカチオンを添加剤として用いた。下地層には PACz、電子輸送層には PCBM を用いて逆構造型デバイスを作製した。デバイス特性は添加したカチオン種の形状に大きく影響を受け、現在のところ約 1.3V 程度の Voc が得られた (図 1)。残念ながらやや Jsc が低く、変換効率は 10%程度であり、また、bandgap=1.8 eV からすると電圧ロスが大きいいため条件の最適化を進めている。講演ではアンモニウムカチオンの形状と各種光電変換パラメーターとの相関や最適化に関して詳細を報告する予定である。

図 1. FAPbIBr₂ 高電圧セルの J - V 曲線

[References] 1. R. Lin, et al., *Nature*, **2023**, <https://doi.org/10.1038/s41586-023-06278-z>; 2. NREL Best Research-Cell Efficiency Chart. <https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html>, June **2023**, accessed; 3. Y. Numata, et al., *JMC A*, **2022**, *10*, 672; 4. 第 83 回 応用物理学会 秋季学術講演会 22p-B103-12; 5. 第 70 回応用物理学会 春季学術講演会 15a-A401-4.

**時空間分解発光分光による
混晶ハライドペロブスカイト薄膜の光誘起相分離の研究**
**Light-induced phase separation in mixed halide perovskite thin film
investigated by space- and time-resolved photoluminescence spectroscopy**

京大化研

○(M2)大穀 裕介, 山田 琢允, 嶋崎 愛, 中村 智也,
金子 竜二, 廣理 英基, 若宮 淳志, 金光 義彦

ICR, Kyoto Univ

○Yusuke Daikoku, Takumi Yamada, Ai Shimazaki, Tomoya Nakamura,
Ryuji Kaneko, Hideki Hirori, Atsushi Wakamiya, and Yoshihiko Kanemitsu

E-mail: daikoku.yusuke.83r@st.kyoto-u.ac.jp

ハロゲン化金属ペロブスカイトは高効率な光デバイス材料として近年広く注目を集めている[1]。その基本的な組成は ABX_3 [$A = \text{Cs}, \text{CH}_3\text{NH}_3 (\text{MA}), \text{HC}(\text{NH}_2)_2 (\text{FA}), B = \text{Pb}, \text{Sn}, X = \text{I}, \text{Br}, \text{Cl}$] で表される。この材料では A, B, X のすべてのサイトで組成の混合によるバンドギャップ制御が可能である。特に X サイトに I と Br を用いた系がタンデム型太陽電池のトップセル材料として精力的に研究されている[2]。しかし、ハロゲン混晶系では連続的な光照射によって発光スペクトルが大きく変化することが知られており[3]、ハロゲン化物イオンの移動による I 相と Br 相の形成が原因として議論されている[4]。この光誘起の相分離現象は太陽電池の安定性に直結する課題であると同時に、基礎光物理からも非常に興味深い現象である。特に、スピンコート法を用いて作製されるペロブスカイト薄膜にはグレイン構造などの空間不均一性が存在し、それらと相分離の関係についても明らかにする必要がある。

そこで本研究では、ハイパースペクトルイメージング分光測定を $\text{Cs}_{0.15}\text{FA}_{0.85}\text{PbI}_x\text{Br}_{3-x}$ ($x = 1.5-2$) 薄膜に対して行い、相分離の空間分布やその時間変化を測定した。励起光を局所的に照射しながら発光スペクトルの空間分布の変化を観測したところ、照射スポットとその周辺において低エネルギー側の発光強度が相対的に増大し、さらに外側では高エネルギー側の発光強度が相対的に増大した。これは光照射スポットよりも大きな空間スケールでの光誘起イオン移動を示している。また、電極上に成膜した試料に対しても測定し、電場印加に応じて発光スペクトルの空間分布が変化することを確認した。その印加電場依存性から移動イオンの同定を試みた。さらに講演では各サイトの組成比依存性の測定を行い、相分離との相関について詳細に議論する。

本研究は、科研費特別推進研究(JP19H05465)、JST-CREST (JPMJCR21B4)、NEDO-GI (JPNP21016) の援助による。

- [1] Y. Kanemitsu and T. Handa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 090101 (2018); T. Yamada, T. Handa, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 383001 (2021).
- [2] F. Fu *et al.*, *Adv. Mater.* **34**, 2106540 (2022).; P. Wu *et al.*, *ACS Cent. Sci.* **9**, 14–26 (2023).
- [3] E. T. Hoke *et al.*, *Chem. Sci.* **6**, 613–617 (2015).
- [4] M.C. Brennan *et al.*, *ACS Energy Lett.* **3**, 204–213 (2018).

Influence of Substrates on CsPbBr₃ Perovskite Deposited by Solution Process, a Step to Photon Up-conversion Solar Cells.

Grad. Sch. of Eng. Kobe Univ., °Hambalee MAHAMU, Koichiro YOSHIDA, Shigeo ASAH, and Takashi KITA

E-mail: 203t268t@stu.kobe-u.ac.jp

In 2017, two-step photon up-conversion solar cells (TPU-SCs) were experimentally achieved after the theoretical study has been proposed. The TPU-SCs are single-junction solar cells consisting of two different bandgap semiconductors functioning as main light absorbers. A wider semiconductor is deposited on top of a narrow one to create band discontinuity at the heterointerface. In practice, Al_{0.3}Ga_{0.7}As and GaAs form the heterointerface where a layer of InAs quantum dots (QDs) are grown aiming to relax the optical selection rule. In other words, the existence of InAs QDs induces in-plane electronic transition which allows below-bandgap photon absorption, hence, the intraband excitation in addition to the interband excitation in the main absorbers [1].

It is interesting to apply the same idea to perovskite/III-V semiconductor-based hybrid photon up-conversion solar cells. The reasons are the increase in popularity of perovskite semiconductors due to their exceptional optoelectronic properties. This might improve energy conversion efficiency in general. Moreover, the study of the influence of the perovskite-GaAs interface on the photon up-conversion process might lead to new interesting physics. Hence, we came up with the idea of CsPbBr₃/GaAs-based photon up-conversion solar cells. The reasons for the utilization of CsPbBr₃ is the extraordinary optoelectronic properties and stability over all perovskites that have been reported so far [2].

We started our fabrication by studying the effect of substrate on morphological, structural, and optical properties since the deposition of CsPbBr₃ is almost done on glass substrates with transparent electrodes. We synthesize CsPbBr₃ film using multistep spin coating [3] deposited on crown glass and GaAs substrates. We varied the number of CsBr deposition times and study the properties of CsPbBr₃ film.

CsPbBr₃ films deposited on glass substrates with CsBr deposition times of 5, 6, and 7 indicate yellowish semi-transparent films. The morphology of CsPbBr₃ films show a smooth surface with good coverage. In addition, with an increasing number of CsBr deposition times, the surface

gradually becomes rough. However, UV-visible spectrograms demonstrate the highest absorbance when CsBr solution was dropped 6 times. Photoluminescence (PL) spectra coincide with the absorption spectra since PL intensity is the largest for the sample with 6 times CsBr deposition.

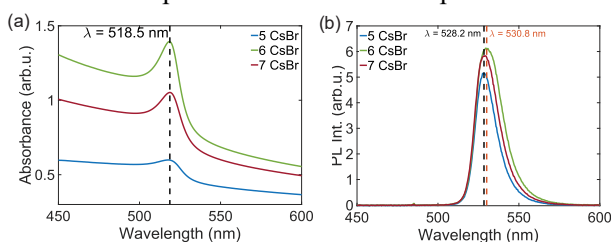


Fig.1 Absorption (a) and PL (b) spectra of CsPbBr₃ deposited on crown glass substrates with various CsBr deposition times.

The same fabrication recipe was used to grow CsPbBr₃ films on i-GaAs (001) substrates. We observed that the morphology of the films is different from the ones on the glasses. CsPbBr₃ the surface of GaAs shows worse coverage which might be caused by the different wettability of GaAs and the crystal properties of GaAs. The UV-visible spectrograms indicate relatively weak exciton absorption differently from CsPbBr₃ films on glasses. Note, that the measurement was done by measuring reflectance since GaAs is opaque for UV-visible light. Therefore, the scattering might have a strong effect on the absorption spectra. Meanwhile CsPbBr₃ film on glass with 6 deposition cycles shows the highest absorption, the same condition applied on GaAs substrates indicates less absorption than 5 deposition cycles. This coincides PL spectra of CsPbBr₃ on GaAs which show relatively small emissions.

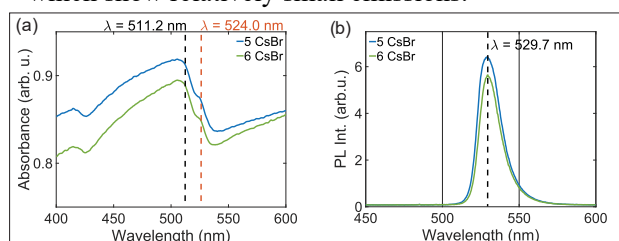


Fig.2 Absorption (a) and PL (b) spectra of CsPbBr₃ deposited on GaAs substrates with various CsBr deposition times.

Reference:

- [1] S. Asahi, H. Teranishi, K. Kusaki, T. Kaizu, T. Kita: Nat. Comm., 8 (2017).
- [2] S. Ullah et al., Mater. Adv., 2, 646-683 (2021).
- [3] J. Yan et al., Sol. Energy Mater. Sol., 234 (2022).

MPAT により Si ウェハ表面に形成したテクスチャへの ペロブスカイト成膜

Formation of perovskite films on textured Si surfaces formed by MPAT

○北陸先端大¹, 金沢大², Yang Pengyu¹, Liu Peng², Huynh Thi Cam Tu¹,

Md. Shahiduzzaman², 當摩 哲也², 大平 圭介¹

JAIST¹, Kanazawa Univ.², Pengyu Yang¹, Peng Liu², Huynh Thi Cam Tu¹,

Md. Shahiduzzaman², Tetsuya Taima², Keisuke Ohdaira¹

E-mail: s2210178@jaist.ac.jp

【緒言】 アルカリ溶液での Si ウェハへのテクスチャ形成において、従来法では、ウェハ表面に付着した H₂ バブルがエッチングの進行を妨げ、テクスチャの粗大化やサイズの不均一化が起こる問題があった。また、タンデムセルへの応用を目的にテクスチャ上にペロブスカイト膜を形成する際には、粗大なピラミッドの頂点や谷を均一に覆うことが困難となる。我々は KOH 溶液に添加したガラス粒子により水素バブルを物理的に破壊し、均一な微小ピラミッドを形成できる microparticle-assisted texturing (MPAT)を開発した[1]。今回は MPAT における薬液の回転速度やガラス微粒子の混入量がテクスチャサイズに与える影響を調査し、また、得られた Si 表面へのペロブスカイト成膜を試みたので報告する。

【実験】 直径~100 μm のガラス粒子を KOH ベースの溶液 SUN-X600 と H₂O の混合液の中に入れ、ホットプレートで 83 °C に加熱し、スターラーで回転させながら、RCA 洗浄後の 2×2 cm² の両面鏡面研磨 Si(100)ウェハ表面を 10 分間エッチングした。その後、90 °C の超純水で洗浄した。最後に、Si ウェハ表面に塗布法でヨウ化鉛メチルアンモニウム(MAPbI₃)を成膜した。走査電子顕微鏡(SEM)によりテクスチャ表面と断面の観察を、紫外可視近赤外分光光度計で反射率測定を行った。

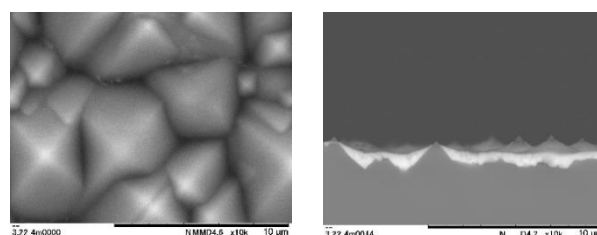


Fig. 1 SEM image of textured Si surface formed by MPAT and cross-sectional SEM image of MAPbI₃/textured Si. MPAT was performed at a rotation speed of 250 rpm with 5.6 wt% glass beads.

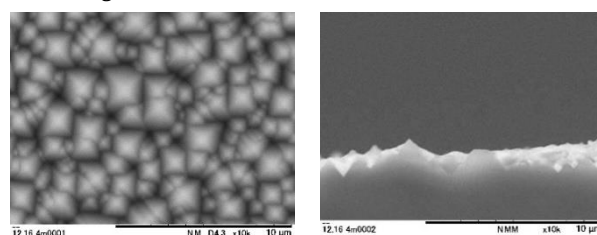


Fig. 2 SEM image of textured Si surface formed by MPAT and cross-sectional SEM image of MAPbI₃/textured Si. MPAT was performed at a rotation speed of at a rotation speed of 1000 rpm with 0.5 wt% glass beads.

【結果・考察】 Fig. 1 および Fig. 2 に、スターラーの回転速度 250 および 1000 rpm での MPAT により形成したテクスチャの表面 SEM 像とペロブスカイト成膜後の断面 SEM 像を示す。前者では、粗大なピラミッドが多く形成され、頂点が覆われていない箇所も多い。一方後者では、微小テクスチャが支配的な表面が形成され、製膜されていない箇所も減少している。発表では、テクスチャの形成条件の最適化についても報告する予定である。

【参考文献】 [1] C. T. Nguyen et al., J. Mater. Res. 33, 1515 (2018).

アニール処理された MoO_3 膜を有するペロブスカイト太陽電池を用いた水素生成検討

Investigation of the hydrogen evolution of perovskite solar cells with the annealed MoO_3 layer

千葉工大¹, 東工大², 産総研³, 藤田凌太郎¹, 川鍋凜¹, 菊池優大¹, 久恒圭人¹,

駒澤雄飛¹, 宮島晋介², 村上拓郎³, 古郷敦史³, 内田史朗¹

Chiba Inst¹, Tokyo Tech², AIST³, Ryotaro Fujita¹, Rin Kawanabe¹, Yudai Kikuchi¹, Keito Hisatsune¹,

Yuto Komazawa¹, Shinsuke Miyajima², Takurou N. Murakami³, Atsushi Kogo³, Shiro Uchida¹

E-mail: s18A3113CN@s.chibakoudai.jp

近年、化石燃料に代わる新たなエネルギー源、太陽光発電で得られた過剰電力による出力制御の課題解決に対しての貯蔵エネルギー源として水素が注目されている^[1]。水分解 EC セルの最適動作電圧約 1.5 V に対してペロブスカイト(PVK)/Si タンデム太陽電池の動作電圧は約 1.5~1.7 V が期待できる。PVK/Si タンデム太陽電池では PVK 側から太陽光を取り込む為、ITO 等の透明導電膜が必要不可欠である。その場合、ITO 成膜時のスパッタダメージへの保護膜として正孔輸送層上に MoO_3 などを成膜する必要があると考えられる。

本研究では、最終目標として PVK/Si タンデム太陽電池を作製するが、前過程としてペロブスカイト太陽電池(PSC)に MoO_3 を成膜し、アニール処理等によりその保護膜としての機能性評価と水素生成実験を行った。

ITO 基板上に SnO_2 電子輸送層を成膜し、 $\text{Cs}_{0.05}(\text{FA}_{0.83}\text{MA}_{0.17})_{0.95}\text{Pb}(\text{I}_{0.83}\text{Br}_{0.17})_3$ ペロブスカイトを文献^[2]に従い成膜した。これに正孔輸送層である spiro-OMeTAD 層を成膜した。さらに MoO_3 と Au 電極を真空蒸着し(図 1)、光電変換特性を評価した。PSC の動作電圧は約 0.6 V であった為、水分解を行なう為に外部電源により 0.9 V 加え、約 1.5 V になるよう調整した。その後、疑似太陽光を 60 分間照射し水分解を行い、太陽光水素エネルギー変換効率 STH (solar to hydrogen)を求めた。

図 2 に MoO_3 を成膜した PSC の電流密度-電圧曲線を示す。また、本実験で得られた STH は 2.4%であった。PSC の性能を比較すると、 MoO_3 蒸着後は非常に低い変換効率を示したが、アニール処理により短絡電流密度が改善し、変換効率 12.0 %まで上昇した。 MoO_3 が高抵抗層として作用したが、アニール処理を行うことで低抵抗化が進んだと考えられる。

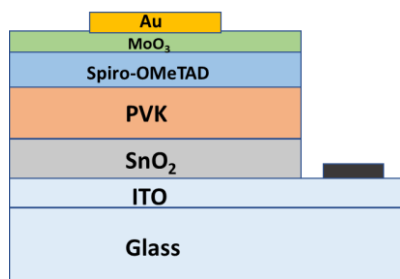


Fig 1 Structure of perovskite solar cell

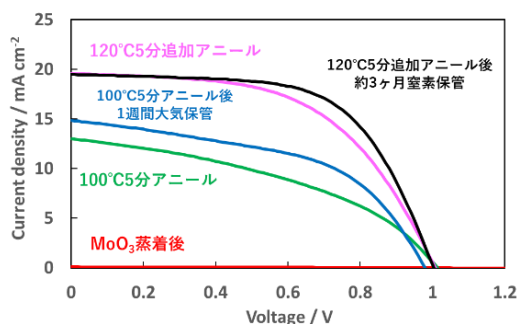


Fig 2 Photocurrent density-voltage curves of PSC with the annealed MoO_3 layer

[1] N. Akihiro et. al, Appl. Phys. Express, 2015, 8, 107101.

[2] M. Saliba et. al, Energy Environ. Sci., 2016, 9, 1989.

Investigation of the Mechanisms behind Enhanced Efficiency and Thermal Stability in Tin-Lead (SnPb) Perovskite Solar Cells

The Univ. of Electro-Communications¹, Univ. of Tokyo², °Shahrir Razey Sahamir^{1*}, Gaurav Kapil¹, Takeru Bessho², Hiroshi Segawa², Qing Shen¹, Shuzi Hayase¹
E-mail: shahrir@uec.ac.jp, hayase@uec.ac.jp

In the latest studies, the enhancement in terms of the performance and the stabilities of the tin-lead (SnPb) perovskite solar cells (PSCs) were achieved via addition of a dopant material and interfacial engineering. Doping technique has been used widely in order to improve the performance of the PSCs because doping materials are able to rectify defects and passivate the perovskite surface to produce high efficiency PSCs. Meanwhile, various research has demonstrated positive impact on the performance of the PSCs via interfacial engineering due to the good energy alignment for effective carrier extractions, reduced interfacial recombination and also a barrier for ions migration. However, these strategies are still not well explained especially in term of the stability in the SnPb PSCs. It is well known that the stability of the SnPb PSCs is governed by the presence of the Sn. The easily oxidized Sn component in the SnPb perovskites, especially in high humidity and high ambient temperature makes the SnPb PSCs not reliable and are at disadvantage when competing with other forms of solar cells. The chemical and the physical structure of the perovskite films will be altered upon oxidation which in turn compromising the PSCs performance. However, there are also other factor such as the ions migration which has proven to be harmful in the PSCs. By implementing the above strategies, the highest efficiency of more than 21% along with high photo and thermal stabilities were demonstrated. The SnPb PSCs which was stored in the nitrogen filled air are able to retain more than 99% of their efficiencies after 1 month of storage. In term of thermal stability, the PSCs are able to retain 100% of their initial efficiencies after subjected to the temperature of 85 °C for over 700 hours in nitrogen atmosphere. Our exploratory of the successful treatment of the doping and interlayer engineering were followed with series of investigations which includes the morphological, structural and elemental of the SnPb thin films before and after exposure to thermal heating via SEM, XRD and XPS. We will also demonstrate the effects of doping and interlayer engineering via impedance spectroscopy technique by extracting the electronic parameters in the SnPb PSCs such as the series and recombination resistances, and also the capacitance of the investigated devices which could help to interpret the ionic activities. Our research concludes that the most important factor that prevent the degradation in the SnPb PSCs underlies in the physical barrier that can restrict the ions migration. This valuable knowledge could help us in the fabrication of the SnPb PSCs with high efficiency and excellent performance stabilities.

Light illumination stability improvement for Sn-Pb mixed perovskite solar cells through surface modification

NIMS¹, Univ. of Tsukuba², °(DC) Yulu He^{1,2}, Md. Emrul Kayesh¹, Muhammad Monirul Islam²,

Wasif Chowdhury¹, Towhid Hossain Chowdhury¹, Md. Abdul Karim¹, Siliang Cao^{1,2},

Takeaki Sakurai², Ashraful Islam¹

E-mail: s2130061@s.tsukuba.ac.jp

Perovskite solar cells (PSCs) have attracted much attention because of the fast progress of their power conversion efficiency (PCE), from 3.8% to 25.7% in the past 14 years.[1] However, the highest efficiency of the PSCs is close to the theoretical efficiency limit (around 31 %) of the single junction PSCs. To overcome the efficiency limit of the single junction PSCs. All perovskite tandem solar cells should be focused on. Sn-Pb mixed PSCs are the key points for achieving all perovskite tandem solar cells. Recently, the best Sn-Pb mixed PSCs have achieved over 23 % efficiency.[2] However, the stability of the Sn-Pb mixed PSCs is relatively low compared to pure Pb-based PSCs, which limits the practical use of the tandem solar cells.

Suppression of Sn^{2+} oxidation is one of the most crucial points for achieving high performance and stability of Sn-Pb mixed PSCs. According to recent studies, the Sn^{2+} oxidation is more dominant on the perovskite surface.[3] The oxidation of Sn^{2+} even occurs during the formation of perovskite film in the inert atmosphere.[4] Therefore, suppression of Sn oxidation of the Sn-Pb mixed perovskite surface is important to achieve highly stable Sn-Pb mixed PSCs.

In this work, a Pb-contained solution was used for perovskite surface treatment, leading to improved light illumination stability of Sn-Pb mixed perovskite solar cells.

Figure 1 (a) shows the current density-voltage (J-V) curves of the control and surface-modified PSCs. The power conversion efficiency (PCE) of the control and surface-modified PSCs is 20.8 % and 21.2 %, respectively. The PCE of the control and surface modified PSCs did not present significant variation. However, under light illumination, the control PSCs presented poor stability. The PCE decreased to around 30 % of the initial PCE within 5 hours. On the other hand, the PCE of the surface modified PSCs maintained 80 % of the initial PCE after 50 hours of light illumination. Without surface modification, Sn^{2+} oxidation may easier occur on the perovskite surface. After Pb^{2+} -contained solution surface modification, the Pb^{2+} ratio increases due to the introduction of the Pb^{2+} , which can suppress the oxidation of the Sn^{2+} on the perovskite surface. Therefore, the surface modified PSCs by the Pb^{2+} -contained solution achieved better stability.

In conclusion, the stability of the Sn-Pb mixed PSCs improved significantly compared to the control devices. This work will contribute to developing the stability of Sn-Pb mixed PSCs and all perovskite tandem solar cells.

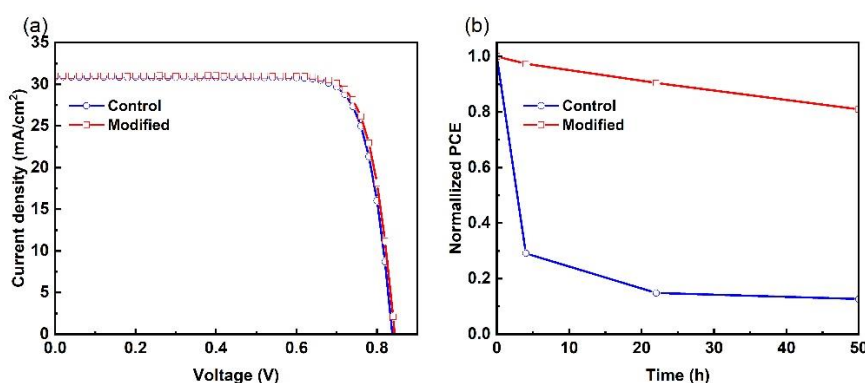


Figure 1. (a) J-V curves, (b) light illumination stability test of the control and the modified PSCs.

References:

- [1] NREL Best Research-Cell Efficiency Chart. [<https://www.nrel.gov/pv/cellefficiency.html>]
- [2] S. Hu, K. Otsuka et al. Energy & Environmental Science, 2022, 15(5): 2096-2107.
- [3] R. M. I. Bandara, S. M. Silva, et al. Energy & Environmental Materials, 2022, 5(2): 370-400.
- [4] R. Lin, J. Xu, et al. Nature, 2022, 603(7899): 73-78.