

早瀬 修二

九州工業大学 大学院生命体工学研究科
教授

酸化物半導体プリカーサーを用いる
相互侵入型無機・有機(無機)バルクヘテロナノ界面の一括構築と太陽電池への応用

§ 1. 研究実施体制

(1)「九州工業大学」グループ

- ① 研究代表者:早瀬修二 (九州工業大学大学院生命体工学研究科、教授)
- ② 研究項目
 - ・無機・有機(無機)バルクヘテロジャンクション界面を有する薄膜太陽電池の作製と機能解明

(2)「電気通信大学」グループ

- ①主たる共同研究者:沈 青 (電気通信大学・大学院情報理工学研究科、教授)
- ②研究項目
 - ・半導体ナノ粒子色素の作製および時間分解スペクトルによる電荷分離界面の電荷分離機構の解明

(3)「宮崎大学」グループ

- ① 主たる共同研究者:吉野 賢二 (宮崎大学工学部、教授)
- ② 研究項目
 - ・無機半導体、化合物半導体色素の作製と光学的、電気的物性の解明および大気生成プロセスの解明

(4)「立命館大学」グループ

- ① 主たる共同研究者:峯元 高志 (立命館大学理工学部、教授)
- ② 研究項目
 - ・高効率デバイス理論設計と界面修飾薄膜層作製

§ 2. 研究実施の概要

当初、ZnO プリカーサーと p 型半導体ポリマーから成る一括生成無機有機複合バルクヘテロ界面に関する研究を提案し採択されたが、研究中に無機物と有機物からなる高効率ペロブスカイト太陽電池が報告され、研究を取り巻く社会情勢が大きく変化した。このため、研究方針を変更するべく、ペロブスカイト太陽電池の界面に関する新提案を行い、研究総括、アドバイザーからの審査を受けた。その結果、研究総括から“提案者のオリジナルである、TiO₂/ペロブスカイト界面のパッシベーション技術の研究に集中し、界面修飾薄膜層の挿入を含め、ヘテロ接合界面と太陽電池特性との関係を明確にし高効率を実現する。界面科学の推進を通じて、将来の実現につながる大きな成果を期待する。”とのコメントを受け、研究方針を変更することとなった。以下にその詳細を示す。

太陽電池シミュレーションにより、光入射側の界面の再結合速度が太陽電池性能を大きく左右することがわかった。効率は界面のトラップ密度が $10^{15}/\text{cm}^3$ まで減少するにつれ向上するが、それ以上低下させても効率は向上しない。 $10^{15}/\text{cm}^3$ まで界面トラップ密度を減少させ、その後効率を上げるためには、ペロブスカイト結晶層（光吸収層）の電荷再結合を抑制する必要がある。光吸収層のキャリア拡散長が約 2 ミクロン以上あれば 20% を超える高い効率が得られることがわかった。例えば、トラップ密度の低下により効率は 18% まで向上するがこの状態で結晶層の欠陥を少なくすることにより 22% 以上の効率が期待できる。本研究では界面電荷再結合にのみ焦点を絞る。シミュレーションに従ってまず光入射側の界面であるチタニア/ペロブスカイト層界面の構造と太陽電池効率との関係を詳細に検討した。チタニア/ペロブスカイト層には Ti-O-Pb 結合が形成され、これらの結合はチタニア界面のトラップ密度を低減していた。また時間分解スペクトルの測定からトラップ密度を低減したチタニア/ペロブスカイト界面でキャリアの寿命が長くなっていることがわかり、界面トラップ密度の低減により電荷再結合が抑制されていることを実証できた。一方、光入射と反対の界面であるペロブスカイト層/ホールトランスファー層界面に F 原子を有する界面活性剤薄膜を挿入することにより、キャリア寿命が延びたことから、F 原子薄膜がペロブスカイト層/ホールトランスファー層界面での電荷再結合を抑制していることがわかった。これらの界面構築により変換効率は従来の 15% 近くから 18% 近くまで向上できた。これらの界面に関する研究によって得られた手法を、赤外光電変換が可能な SnPb 混合金属ペロブスカイト太陽電池の性能向上に応用した。チタニア/SnPb ペロブスカイト界面に高いトラップ密度が形成されることを見出し、この界面をなくすることにより、5% の効率を 16% の効率まで向上させることができた。一方、界面での電荷再結合を抑制する方法として、上記トラップ密度の低減以外に、CIGS 太陽電池で電荷再結合が抑制されることが実証されている伝導帯準位にスパイク構造を導入する検討を行った。

モデル酸化膜として ZnMgO バッファ層 (PVK/ZnMgO/FTO/glass) を用いた。ZnO に Mg をドーピングすることにより、緩衝層の伝導帯準位がペロブスカイト層の伝導帯準位よりも高いスパイク構造とすることができた。効率はクリフ構造の ZnO を緩衝層に用いた場合よりも、スパイク構造の ZnMgO を用いた場合が向上し、スパイク構造が効率向上に効率に有効であると推定できた。緩衝層については今後さらに詳細な検討を続ける。