

# ペロブスカイト・シリコンタンデム太陽電池用 トップセル作成のための成膜技術の検討

望月敏光<sup>1</sup>、荒木祥太<sup>1</sup>、高遠秀尚<sup>1</sup>、奥山豊<sup>2</sup>、佐野健志<sup>2</sup>  
<sup>1</sup>産業技術総合研究所 再生可能エネルギー研究センター、<sup>2</sup>山形大学

## 研究の目的

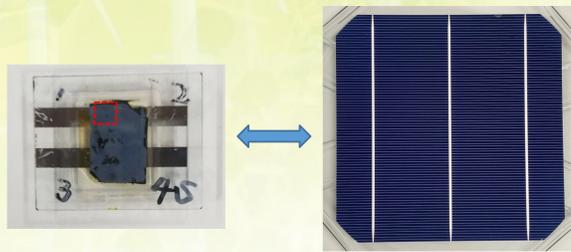


図1：(左) 山形大学で作成したペロブスカイト太陽電池。赤の点線で示した領域が3 mm角の太陽電池となっている。(右) 一般的な大きさの結晶シリコン太陽電池。156 mm角の大きさがあり、この大きさの領域に3 mm角の太陽電池作成のレシピをそのまま適用してペロブスカイト太陽電池を作ることは出来ない。

鉛ハライドペロブスカイト化合物を活性層とする太陽電池はインク塗布による成膜により約3 mm角(0.0954 cm<sup>2</sup>)では単体で25.5%の効率を示し[1]、インクのレシピを変えることでバンドギャップ制御も可能であるため、これをトップセルとし、結晶シリコン系太陽電池をボトムセルとしたタンデム太陽電池が30%を超える変換効率と低コストを両立した太陽電池の実現に有望である。

本研究の目的は、これまで1cm前後の大きさで研究されてきたペロブスカイト太陽電池のスケールアップのために必要な要素技術の研究と開発である。

## 結果① 発電特性の例

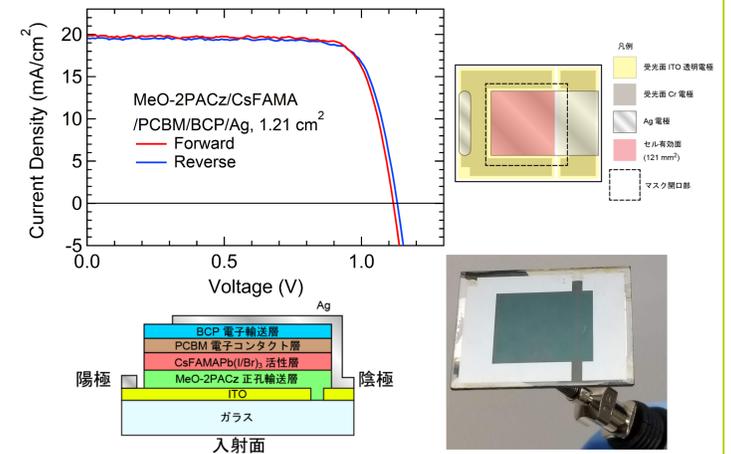


図3：(左上) 作成した太陽電池試料の発電特性の例。(右上) 裏面側から見た場合のセル設計図。(左下) 作成したセルの構造。(右下) 作成したセルを入射面側から見た場合の写真。

2021年12月時点での11mm角セルの発電特性の例を示す。電圧上昇(下降)側で効率17.5 (17.5) %、開放電圧1.12 (1.13) V、短絡電流密度19.8 (19.6) mA/cm<sup>2</sup>、曲線因子0.79 (0.79)であり、ヒステリシスも殆ど無いことが分かる。このセルはバンドギャップが1.7 eVとシリコンとのタンデムに最適化されており、この効率であってもボトムセルの効率を24%として適切にタンデム化された場合28%の効率が見込める。現在さらなる高効率を求めて、各種のレシピや試料作製条件を山形大学と連携して最適化しており、並行して特性を損ねずにプロセスの制約(特に超低湿度環境が必須である点)を緩和する手段を検討している。

## 実験

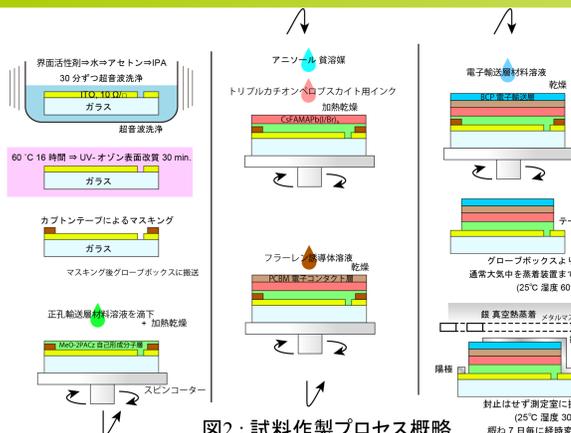


図2：試料作製プロセス概略

左図に示すようなプロセスにより11mm角(1.21cm<sup>2</sup>)のペロブスカイト太陽電池を作成し、その発電特性及びその経時変化を評価した。太陽電池はp-i-n型であり、プロセスの特徴としてはp-i-n型にあつてはC<sub>60</sub>を含む材料を真空蒸着し多層膜とする場合が多い[2][3]電子輸送層をスピコーティングにより成膜し、銀電極のみを真空蒸着により行っている点が挙げられる。作成した太陽電池は封止せずに湿度20%、25°Cの空气中で保管して経時変化を見た。

## 結果② 発電特性の経時変化

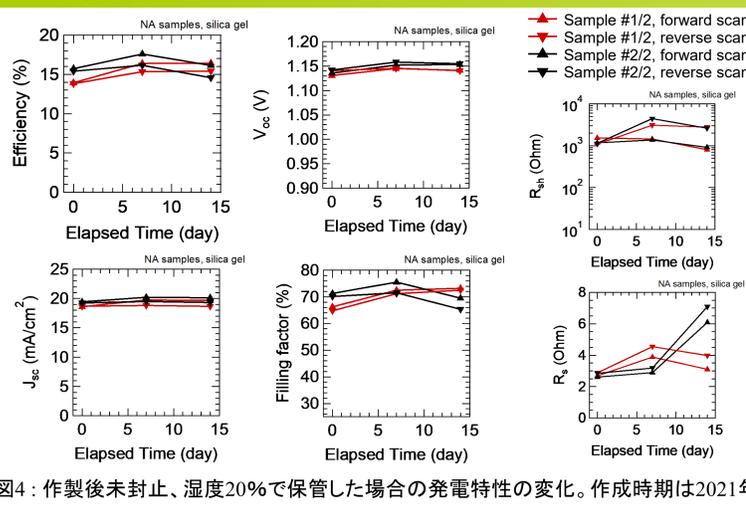


図4：作製後未封止、湿度20%で保管した場合の発電特性の変化。作成時期は2021年9月。

2021年9月作成の11mm角セルを湿度20%で保管した場合の発電特性の経時変化を示す。図3に示したものより3か月早い時期の実験であるため初期の特性はやや劣る。エネルギー変換効率は作成直後に比べ7日後の方が高い場合があることが分かった。この際開放電圧、短絡電流およびフィルファクターの全てが向上する場合があることも分かった(図5)。外部量子効率も全波長領域においてほぼ均一に向上している。但しヒステリシスについては時間経過により大きくなる傾向が見られた。湿度20%は輸送容器内でも比較的容易に維持できる値である。これはタンデム太陽電池作成に向け、今回のレシピによる太陽電池がプロセス途中での輸送にある程度耐えうることを意味する。

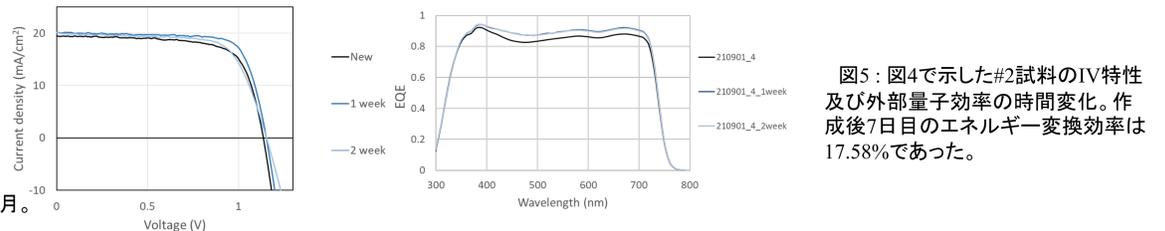


図5：図4で示した#2試料のIV特性及び外部量子効率の時間変化。作成後7日目のエネルギー変換効率は17.58%であった。

## まとめと今後の展開

- ◎ 正孔輸送層、ペロブスカイト層および電子輸送層を順にスピコーティングにより成膜してトリプルカチオン太陽電池を作成し、エネルギー変換効率17.5%(セル面積1.21 cm<sup>2</sup>)を得た。
- ◎ 湿度20%、25°Cの空气中で保管した試料が1週間程度エネルギー変換効率を保つことが分かった。
- ◎ NEDOプロジェクトの目標であるエネルギー変換効率30%超のタンデム太陽電池の実現のために、更なる効率向上が必要である。
- ◎ こうした比較的小面積でのエネルギー変換効率の向上と並行し、より大きな面積(100cm<sup>2</sup>)への全面成膜でのセル作成を進めている。
- ◎ 貧溶媒を用いたスピコーティングによる成膜はペロブスカイト太陽電池を作成する方法としては最も高いエネルギー変換効率を示すが、インク等材料の使用率が低いという問題があるので、印刷機によるスリットコーティングによるインク塗布と窒素吹き付けによるガスクエンチを併用した成膜の検討を進める。

## 参考文献

- [1] Green, M. A., Dunlop, E. D., Hohl-Ebinger, J., Yoshita, M., Kopidakis, N., & Hao, X. (2022). Solar cell efficiency tables (version 59). Progress in Photovoltaics: Research and Applications, 30(1), 3-12.
- [2] Yang, D., Sano, T., Yaguchi, Y., Sun, H., Sasabe, H., & Kido, J. (2019). Perovskite Solar Cells: Achieving 20% Efficiency for Low-Temperature-Processed Inverted Perovskite Solar Cells (Adv. Funct. Mater. 12/2019). Advanced Functional Materials, 29(12), 1970074.
- [3] Stolterfoht, M., Grischek, M., Caprioglio, P., Wolff, C. M., Gutierrez-Partida, E., Peña-Camargo, F., ... & Neher, D. (2020). How to quantify the efficiency potential of neat perovskite films: perovskite semiconductors with an implied efficiency exceeding 28%. Advanced Materials, 32(17), 2000080.

## 謝辞

トップセル、ボトムセルの効率とタンデム太陽電池の効率の関係の理論計算を行った上出健仁博士及び、ご助言ご検討頂きましたカネカ株式会社の三島良太博士、足立大輔博士、山本憲治博士に御礼申し上げます。また本研究はNEDOプロジェクト太陽光発電主力電源化推進技術開発/太陽光発電の新市場創造技術開発/移動体用太陽電池の研究開発の一環として行われました。関係各位に御礼申し上げます。