

ペロブスカイト太陽電池における 薄膜材料中の電荷状態の光誘起 ESR 研究

Light-induced ESR study on charge states in thin-film materials
for perovskite solar cells

筑波大院数物¹, 九工大院生命体工², 筑波大学学際セ³

○生天目 美貴¹, 八武崎 正樹¹, 尾込 裕平², 早瀬 修二², 丸本 一弘^{1,3}

Univ. of Tsukuba¹, Kyushu Inst. of Technology², TIMS, Univ. of Tsukuba³

○Miki Namatame¹, Masaki Yabusaki¹, Yuhei Ogomi², Shuzi Hayase², Kazuhiro Marumoto^{1,3}

E-mail: s-namatame@ims.tsukuba.ac.jp, marumoto@ims.tsukuba.ac.jp

はじめに: ペロブスカイト太陽電池は高い光エネルギー変換効率を示し、近年盛んに研究が進められている。しかし、光電変換機構や素子性能劣化機構については未解明の問題が多く、ミクロな視点からの研究は殆ど行われていない。今回、電子スピン共鳴 (ESR) を用いて TiO₂/ペロブスカイト層/ホール輸送層を含む積層試料の電荷状態を微視的な観点から研究したので報告する。

実験: 測定試料として単層膜 (CH₃NH₃PbI₃、緻密 TiO₂ (膜厚 30~35 nm)、多孔質 TiO₂ (膜厚 150~180 nm))、および積層膜 (多孔質 TiO₂/CH₃NH₃PbI₃、CH₃NH₃PbI₃/spiro-OMeTAD, LiTFSI, 4-tert-butylpyridine (HTM)) を作製した。ヘリウム雰囲気下で ESR 試料管に封入し、暗状態や疑似太陽光照射下、室温で ESR 測定を行った。

結果: 単層膜試料と多孔質 TiO₂/CH₃NH₃PbI₃ 積層膜試料からは、暗状態や光照射下のどちらにおいても室温では明瞭な ESR 信号が観測されなかった。この結果は、単層膜試料が欠陥の少ない良質な薄膜であることを示している。そして、積層膜試料については暗状態では欠陥に由来した界面での電荷移動が生じておらず、光照射下では電荷移動に起因したスピンは ESR 線幅のブロードニングのため観測されないことを示している。一方、CH₃NH₃PbI₃/spiro-OMeTAD の積層試料からは明瞭な ESR 信号が室温、暗条件下で観測された。この試料の ESR 信号の光照射時間依存性を Fig. 1 に示す。光照射時間と共に信号強度が単調に増加した。この信号は spiro-OMeTAD に由来すると考えられ、spiro-OMeTAD に移動した正孔の戻りが遅いことを示している。また、Fig. 2 に spiro-OMeTAD の正孔の光照射時のスピン数の過渡応答特性を示す。過渡応答特性には異なる時定数を持つ 2 成分が存在し、早い光応答成分は spiro-OMeTAD バルク材料中の、遅い光応答成分は界面での電荷蓄積に由来すると考えられる。現在、素子の LESR 測定も進めており、合わせて報告する予定である。

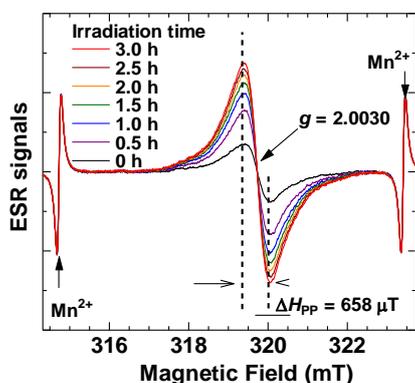


Fig. 1 Light-induced ESR (LESR) signals of CH₃NH₃PbI₃/spiro-OMeTAD layered film.

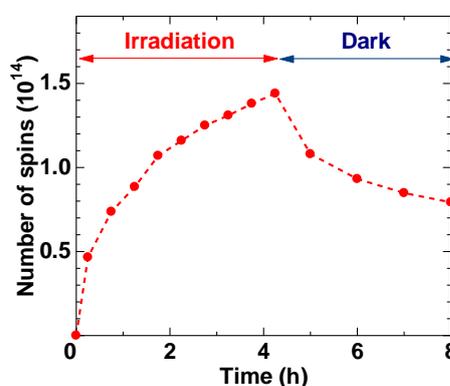


Fig. 2 Transient response of the number of spins in CH₃NH₃PbI₃/spiro-OMeTAD layered film.