

## CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> ペロブスカイト半導体の光学特性 Optical properties of CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> perovskite semiconductors

岐阜大学 電気電子・情報工学科<sup>1</sup>,

産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター<sup>2</sup>

白山 将基<sup>1</sup>, 門脇 英之<sup>1</sup>, 宮寺 哲彦<sup>2</sup>, 杉田 武<sup>2</sup>, 玉腰 正人<sup>1</sup>, 加藤 雅人<sup>1</sup>, 藤関 健正<sup>1</sup>,  
村田 大輔<sup>1</sup>, 原 昌太<sup>1</sup>, 村上 拓郎<sup>2</sup>, 藤本 祥平<sup>1</sup>, 近松 真之<sup>2</sup>, ○藤原 裕之<sup>1</sup>

Gifu University<sup>1</sup>, AIST<sup>2</sup>

M. Shirayama<sup>1</sup>, H. Kadowaki<sup>1</sup>, T. Miyadera<sup>2</sup>, T. Sugita<sup>2</sup>, M. Tamakoshi<sup>1</sup>, M. Kato<sup>1</sup>, T. Fujiseki<sup>1</sup>,  
D. Murata<sup>1</sup>, S. Hara<sup>1</sup>, T. N. Murakami<sup>2</sup>, S. Fujimoto<sup>1</sup>, M. Chikamatsu<sup>2</sup>, and ○H. Fujiwara<sup>1</sup>

E-mail: fujiwara@gifu-u.ac.jp

【はじめに】有機無機ハイブリッド型半導体である CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub>(MAPI)は、20%近い変換効率を持つ太陽電池を溶液プロセスから作製可能な材料として、大きく注目されている。しかし、MAPIの光学遷移・特性については、様々なモデルやデータが報告されており、現状では、一致した結論には到達していない。特に、MAPIの光吸収係数 $\alpha$ に関しては、光エネルギー2 eV ( $\lambda=620$  nm)の値として  $2 \times 10^4 \sim 9 \times 10^4$  cm<sup>-1</sup>の大きく異なる値が報告されている(図1)<sup>1)</sup>。そこで我々は、MAPIの光学基礎特性を明らかにするため、分光エリプソメトリー(SE)および分光感度シミュレーションによる解析を行った。【実験】MAPI層は、PbI<sub>2</sub>およびCH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>I原料を用いたレーザー蒸着法<sup>1)</sup>によりZnOコート結晶Si基板上に作製した。レーザー蒸着法では、表面ラフネス( $d_{rms}$ )が5 nm以下の超平坦膜が作製でき、SE評価におけるラフネスの悪影響<sup>2)</sup>を低減することが可能である。SE解析では、同条件で作製された厚さの異なる2試料(45 nm, 85 nm)を用い、これらのスペクトルに対して誤差最小化法<sup>2)</sup>を適用して高信頼性評価を行った。さらに、SE測定にはグローブバッグを用い、MAPI試料を一度も大気に開放せずに測定を行い、大気劣化の影響を排除した。

【結果および考察】図1(a)は、本研究およびこれまでの研究において求められているMAPIの $\alpha$ スペクトルをまとめている。エリプソメトリー解析の詳細な検討の結果、図1(a)の吸収係数の違いは、主にMAPIの表面に存在する極めて大きいラフネスの影響に起因することが明らかとなった<sup>1)</sup>。図1(b)は、報告されている4端子タンデム型太陽電池用ペロブスカイト太陽電池<sup>3)</sup>に対する分光感度スペクトル解析の結果を示している<sup>1)</sup>。この図には、(a)の異なる $\alpha$ <sup>4,5)</sup>を使用した時の解析結果が示されているが、我々の測定結果を用いると、実験値と極めてよく一致することが分かる。以上の結果から、MAPIの $\alpha$ は、2.0 eVで  $3.8 \times 10^4$  cm<sup>-1</sup>であり、CuInGaSe<sub>2</sub>とCdTe半導体と同程度であることを明らかにした。1) Shirayama et al., Phys. Rev. Applied (2016): in press (arXiv:1507.08824), 2) 分光エリプソメトリー 第2版, 藤原裕之, 丸善 (2011), 3) Kranz et al., J. Phys. Chem. Lett. **6**, 2676 (2015), 4) Ball et al., Energy Environ. Sci. **8**, 602 (2015), 5) Löper et al., J. Phys. Chem. Lett. **6**, 66 (2015).

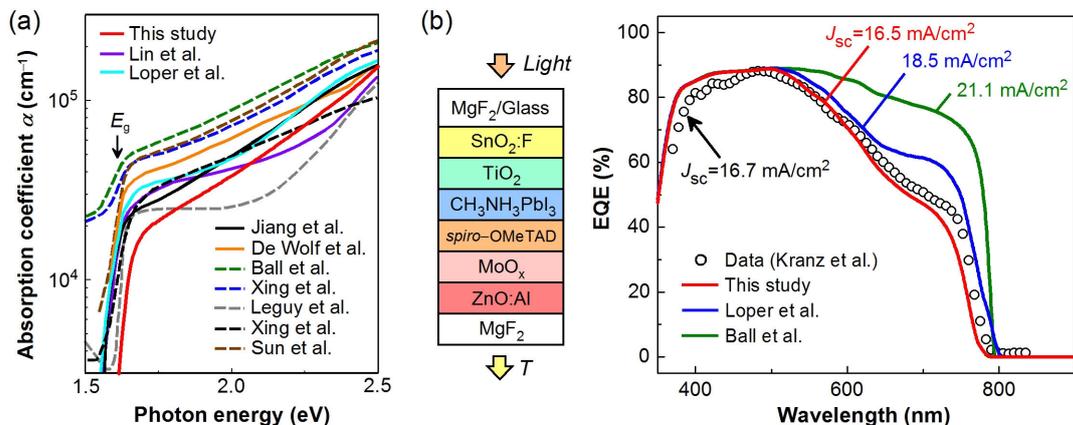


Figure 1. (a)  $\alpha$  spectra of CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> reported in this study and earlier studies and (b) EQE analysis for “a semi-transparent CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> solar cell” reported by Kranz et al. In (a), the spectra are shown as dotted lines when  $\alpha$  shows high values even at  $E < E_g$ . In (b), three EQE spectra calculated assuming different  $\alpha$  spectra in (a) are shown.