

長期安定な鉛フリー- $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ 薄膜太陽電池の基礎光学特性

Optical Properties of Long-Term Stable Lead-Free $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ Thin-Film Solar Cells

京大化研¹, CEREB A² ○半田岳人¹, 山田琢允¹, 久保田広文², 伊勢翔吾², 宮本佳洋², 金光義彦¹
 Kyoto Univ.¹, CEREB A² ○T. Handa¹, T. Yamada¹, H. Kubota², S. Ise², Y. Miyamoto², Y. Kanemitsu¹

E-mail: handa.taketo.86r@st.kyoto-u.ac.jp

ハロゲン化金属ペロブスカイト太陽電池は、簡便に作製できる上に優れた光電変換性能を示すことから、活発に研究されている。金属カチオンとして鉛を用いることで、20%を超える高い光電変換効率が実現されてきたが[1]、鉛の有毒性や環境への影響などが実用化を目指す上で問題視される。そこで近年、スズ (Sn) を用いた鉛フリーペロブスカイト太陽電池の研究が精力的に行われている[2]。鉛フリー-Sn ペロブスカイト太陽電池において、 SnF_2 の添加が薄膜のモルフォロジーの改善や残留正孔密度の低減をもたらし、デバイス性能を飛躍的に向上させることが明らかになった[3]。しかし、 SnF_2 の添加が、基礎的な光学特性に与える影響については全く解明されていない。半導体の光吸収や発光 (PL) は、太陽電池特性に直接結びつく重要な物性であるため[4]、その詳細な理解は、Sn ペロブスカイト太陽電池の変換効率 (現在は未だ 6%程度) の向上のために不可欠である。そこで我々は、吸収・共鳴励起 PL・時間分解 PL 測定を用いることで、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ (MASnI_3) 薄膜および太陽電池におけるバンド端近傍の光学応答および光キャリア損失過程を、 SnF_2 添加の効果を含め評価した。

本研究では、1段階法を用いて、 MASnI_3 薄膜および FTO/compact TiO_2 /mesoporous TiO_2 / MASnI_3 /PTAA/Au の太陽電池を作製した。薄膜・太陽電池ともに SnF_2 有り・無しを試料を作製した。封止構造により長期安定な薄膜と太陽電池が実現でき、それにより詳細な光学特性の研究が可能となった。 MASnI_3 (SnF_2 有) 薄膜は 1.25 eV から急峻に立ち上がる吸収スペクトルを示したが、 MASnI_3 (SnF_2 無) 薄膜は 1.3 eV 程度からゆるやかな変化を示した。一方、 SnF_2 の有無で PL ピークエネルギーに変化は見られなかった。これらは、 MASnI_3 (SnF_2 無) 薄膜内に多量に存在する正孔[2]により、価電子帯頂点付近の状態が占有されることによる Burstein-Moss 効果で説明できる。また、 MASnI_3 (SnF_2 有) 薄膜の共鳴励起での PL スペクトル形状は励起光エネルギーによって変化せず、スペクトル幅は強い電子-格子相互作用により決まることが分かった。さらに、 SnF_2 の添加はキャリア寿命の 1 桁以上の増加をもたらし、光キャリアの電荷輸送層への取り出し効率を 80%程度まで向上させた。 MASnI_3 薄膜・デバイスの光学特性を明らかにした。

本研究は JST-CREST(JPMJCR16N3)、NEDO、日本学術振興会(17J09650)の援助による。

References

- [1] W. S. Yang *et al.*, *Science* **348**, 1234 (2015); M. Saliba *et al.*, *Energy Environ. Sci.* **9**, 1987 (2016).
- [2] F. Hao *et al.*, *Nat. Photon.* **8**, 489 (2014); N. K. Noel *et al.*, *Energy Environ. Sci.* **7**, 3061 (2014).
- [3] M. H. Kumar *et al.*, *Adv. Mater.* **26**, 7122 (2014); W. Liao *et al.*, *Adv. Mater.* **28**, 9333 (2016).
- [4] T. Handa *et al.*, *Opt. Express* **24**, A917 (2016); T. Handa *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **8**, 954 (2017); Y. Kanemitsu, *J. Mater. Chem. C* **5**, 3427 (2017).