

ペロブスカイト/酸化物の界面構造の安定性

Investigation of stable structure in perovskite / oxide interface

○(M2) 山崎 純¹, 山本 久美子¹, 飯久保 智^{1,2}, 早瀬 修二^{1,2} (九工大生命体¹、JST-MIRAI²)

○J. Yamasaki¹, K. Yamamoto¹, S. Iikubo^{1,2}, and S. Hayase^{1,2} (Kyushu Inst. Tech.¹, JST-MIRAI²)

E-mail: iikubo@life.kyutech.ac.jp

MAPbI₃ (MA=CH₃NH₃) を光吸収層とするペロブスカイト型太陽電池は、高効率・低コスト・プリントブルの利点から Si 太陽電池に変わるものとして注目を集めている。現在、実用性を考慮し Pb を Sn などに置き換える研究が盛んに進められているが¹⁾、MASnI₃ では変換効率が低い。この原因としては、ペロブスカイト/酸化物 (TiO₂) 界面で形成される電荷再結合トラップの存在が実験的に示唆されており、酸化物 (TiO₂, Al₂O₃, Y₂O₃ など) 層との界面構造の理解が、光電変換効率の向上には重要と考えられる。前回の発表ではペロブスカイト/Y₂O₃ 界面において、Y は CsSnI₃、MASnI₃ の Sn サイトに、O は CsSnI₃ の I サイトに混入する可能性について報告した。今回はその界面構造の安定性の要因を詳しく調べた。

計算にはペロブスカイト構造 ABX₃ の 2×2×2 の supercell を用い、A サイト、または B サイトの原子を Ti、Al、Y に、X サイトの I 原子を O に置き換えた。それらの構造モデルに対し、第一原理計算コード VASP を用いて算出した欠陥生成エネルギーを図 1 に示す。CsSnI₃ の B サイトに Y を置換させることで安定性が最も向上していることがわかる。この CsSn_{0.875}Y_{0.125}I₃ に対し、原子間の結合性を評価した。図 2 には、CsSnI₃ の Sn-I、CsSn_{0.875}Y_{0.125}I₃ の Y-I と Sn-I の 3 つの結合の COHP (crystal orbital Hamilton population) を示す。ここで、COHP が負の値であれば結合性、正の値であれば反結合性を示す。CsSnI₃ の Sn-I 結合は $E - E_F = -3 \sim 0$ eV の間で反結合性を示しているが、Y-I 結合は反結合性を示さないことが分かる。つまり、Sn を Y に置換することにより、B サイト-X サイト間の結合の反結合性の減少が生じ、構造安定性が向上していると考えられる。

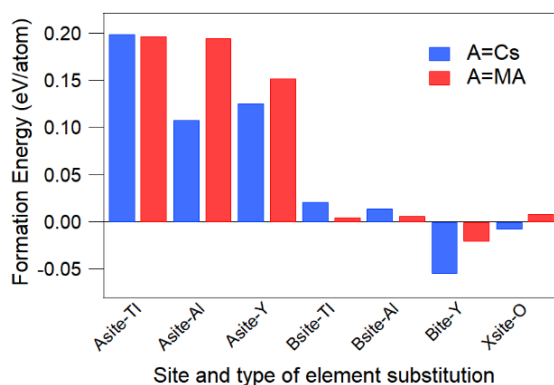


図 1 : Formation energy of CsSnI₃ and MASnI₃ with several impurities.

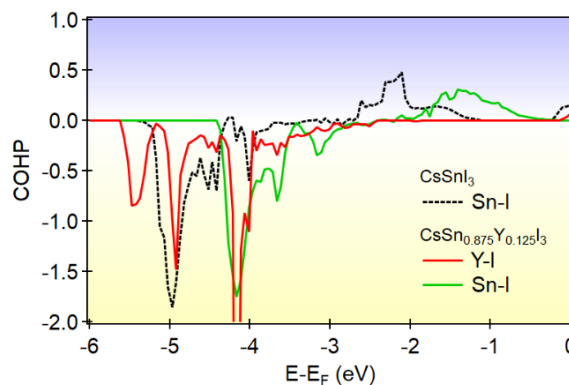


図 2 : COHP of Sn-I and Y-I bond

[1] K. Yamamoto, S. Iikubo, J. Yamasaki, Y. Ogomi, and S. Hayase, J. Phys. Chem. C, 2017, 121 (50), pp 27797–27804