

# ペロブスカイト太陽電池のホール輸送層への応用に向けた スパッタ成膜による P 型ヨウ化銅薄膜の形成

## Fabrication of p-type CuI thin films by sputtering deposition for the application of hole transport layer in perovskite solar cells

○安藤 宏汰<sup>1</sup>, 野沢 真輝<sup>1</sup>, 芦川 宙<sup>1</sup>, 金子 哲也<sup>1</sup>, 進藤 春雄<sup>2</sup>, 磯村 雅夫<sup>1</sup>

東海大学工学部電気電子工学科<sup>1</sup>, プラズマ理工学研究所<sup>2</sup>

E-mail: 4bei1122@mail.tokai-u.jp

**【緒言】** 太陽電池には再生可能エネルギー利用技術として大きな期待が寄せられている。普及を加速させるには、さらなる変換効率の向上などが必要である。そんな中でも現在注目されている太陽電池としてペロブスカイト太陽電池がある。塗るだけで作成可能な利点を持つペロブスカイト太陽電池は近年、目まぐるしい変換効率の向上が見受けられる。しかしこのペロブスカイト太陽電池の正孔輸送層に一般的に使用されている Spiro-OMeTAD という有機系化合物にはコスト面、耐久性において問題がある。そこで p 型伝導を示すヨウ化銅 (CuI) をペロブスカイト太陽電池の正孔輸送層に適用することで、コスト面、耐久性の改善を目的としている。今回は、スパッタ法で作製した窒化銅 (Cu<sub>3</sub>N) 薄膜をヨウ素化することで CuI 薄膜の作製を試みた。

**【実験】** CuI の作製にあたりまず、RF マグネトロンスパッタリング法により窒化銅 (Cu<sub>3</sub>N) の製膜を行った。スパッタガスには Ar ガス及び N<sub>2</sub> ガス、ターゲットには Cu (99.99%) を用いた。この際 N<sub>2</sub> ガスと Ar ガスの流量比 [N<sub>2</sub>/(Ar+N<sub>2</sub>)] を 5 から 50 % に変化させ、ターゲットに印加する RF 電力を 100 W、基板温度を 100 °C とし、チャンバー内のガス圧力を 1 Pa、3 Pa に変化させた。次に作製した Cu<sub>3</sub>N をガラス容器に膜面が上になるように入れ、固体ヨウ素を入れて封入した後、常温で 60 分間反応させヨウ素化を行った。ヨウ素化後の試料は室温で一昼夜放置した。

**【結果及び考察】** Fig.1 にヨウ素化前の Cu<sub>3</sub>N 薄膜とヨウ素化後の CuI 薄膜の結晶配向性の変化を示す。ヨウ素化により Cu<sub>3</sub>N(111)面のピークは消失し、CuI(111)(220)(311)面にピークが生じた。これにより多結晶の CuI 薄膜が生成されていることが確認出来た。次に、Cu<sub>3</sub>N 成膜時のガス圧力 1 Pa、3 Pa において N<sub>2</sub> ガス流量比を変化させた際の、ヨウ素化前後での導電率の変化を Fig.2 に示す。ヨウ素化前は、1 Pa、3 Pa 共に N<sub>2</sub> ガス流量比が高くなるにつれて導電率の減少が確認出来た。これは Cu<sub>3</sub>N 窒素含有量が徐々に増加しているためだと考えられる。また、1 Pa に比べて 3 Pa では導電率が低いことが確認出来た。しかし、ヨウ素化後は 1 Pa、3 Pa のガス圧に関わらず導電率に大きな変化は見られず、N<sub>2</sub> ガス流量比の変化に対しても大きな変化は確認できなかった。これは、ヨウ素導入により窒素が置換し、ヨウ素が再配列したため、導電率に顕著な違いが生まれなかったのではないかと考えられる。また、膜厚 300 nm と 1200 nm の CuI 薄膜で導電率の比較を行ったところ、導電率はそれぞれ 16.7 S/cm と 21.2 S/cm と差は小さかった。これより、ヨウ素化後の CuI 薄膜の導電率は膜厚にはそれほど依存しないと言える。ペロブスカイト太陽電池に適用するに当たり、ホール輸送層膜厚の検討は必須であるが、その際に膜厚によらず同等の導電性を持つ CuI 薄膜を形成可能だと考えられる。発表では、本成膜手法により形成した CuI 膜をペロブスカイト太陽電池のホール輸送層に適用した結果を合わせて報告する。

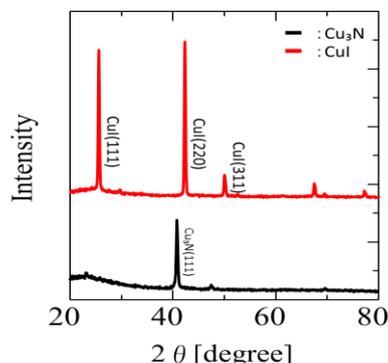


Fig. 1. X-ray diffraction patterns of the Cu<sub>3</sub>N and CuI thin films.

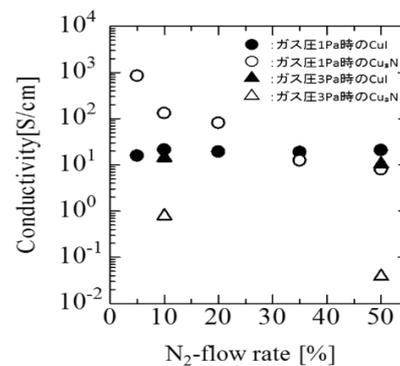


Fig. 2. Conductivity of the Cu<sub>3</sub>N and CuI thin films as a function of N<sub>2</sub> flow rate ratio under the Cu<sub>3</sub>N deposition.