

## マイクロ波照射下における自己発熱を利用した ITO 透明導電膜の作製と色素増感太陽電池への応用

ITO transparent conductive film prepared by a microwave heating for a dye sensitized solar cell

静岡大院工, °内藤 貫太, 鈴木 康介, 奥谷 昌之

Shizuoka Univ., °Kanta Naito, Kosuke Suzuki, Masayuki Okuya

E-mail: tcmokuy@shizuoka.ac.jp

### 1. 緒言

透明導電膜はスパッタ法や CVD 法で作製されるが、これらの製法は長時間を要する。そこで本研究室では、急速加熱による短時間焼成が可能なマイクロ波加熱法を用いた製膜を検討してきた<sup>1)</sup>。今回、この手法を利用して新規に ITO 膜を作製し、これを色素増感太陽電池(DSSC)へ応用した。

### 2. 実験手順

di-*n*-butyltin diacetate(DBTDA)エタノール溶液に所定量の ammonium fluoride 水溶液を添加した前駆体溶液をスプレー熱分解(SPD)法で基板温度 450 °C のガラス基板の上に噴霧し、膜厚 50 nm のバッファ層を作製した。次にバッファ層上へエタノールに ITO 微粒子分散液(Sigma-Aldrich 700460)を加えた ITO 微粒子溶液をスピコート法で塗布・乾燥後、電気炉 500 °C で 1 時間焼成して ITO 微粒子層を作製した。次に、ITO 微粒子層上に  $\text{InCl}_3 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  と  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  の混合エタノール溶液をスピコート法で塗布・乾燥後、出力 25 W でシングルモードのマイクロ波を 2 分間照射した。この操作を繰り返して膜厚 0.3  $\mu\text{m}$  の ITO 膜を作製し、ITO 層/ITO 微粒子層の積層構造をもつ透明導電膜を作製した。次に、ITO 膜上に  $\text{TiO}_2$  ゼル(STS-01;石原産業(株))と  $\text{TiO}_2$  微粒子(P25;Degussa)の混合溶液を低温 SPD 法で堆積し、半導体式装置(富士電波工機(株) FSU-201VP-04)を用い、出力 25 W のシングルモード電界を 3 min 照射し、 $\text{TiO}_2$  層の焼成を行った。さらに、これに N719 色素を吸着させて作用極を作製し、白金対電極間に  $\text{I}^-/\text{I}_3^-$  電解液を注入してセルを組み立てた<sup>2)</sup>。電池特性評価は、擬似太陽光(AM-1.5, 100  $\text{mW}/\text{cm}^2$ )照射下で行った<sup>3)</sup>。

### 3. 結果と考察

本研究で作製した ITO 微粒子層、およびこれに堆積した ITO 層の表面 SEM 像を Fig. 1 に示す。ITO 微粒子層は、粒径 30 nm 程度の微粒子が基板全体に均一に堆積されていた。一方、ITO 層の表面形態は、粒径 100 nm 程度の角張った粒子で構成されていた。次に、各 ITO 膜の光学電気特性、およびこれを利用したセルの太陽電池特性を Table 1 に示す。ITO 膜の抵抗率は  $6.9 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 、

透過率は 84.9 % であり、色素増感太陽電池へ応用可能な特性を示した。さらに、ITO 膜を利用したセルは短絡電流密度( $J_{\text{sc}}$ )が 15.3  $\text{mA}/\text{cm}^2$  を示し、変換効率( $\eta$ )が 6.3 % に達した。 $\text{TiO}_2$  層の積層の際、大気中で 500 °C の焼成を要し、ITO 膜が劣化することが知られている。このため、ITO 膜を DSSC に利用することが一般的に困難とされている。しかし、本研究で採用したマイクロ波加熱において、 $\text{TiO}_2$  層の短時間焼成が可能であるため、ITO 膜の劣化が抑えられ、マイクロ波加熱法の可能性が示された。今後、ITO 膜の低抵抗化を図ることで、セルの更なる特性向上が期待される。

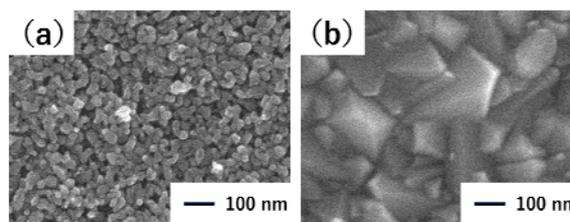


Fig. 1 Surface morphology of the film: (a) ITO nano-particle layer, and (b) ITO film deposited on the nano-particle layer by a microwave heating technique.

Table 1 Electrical and optical property of the double-layered ITO film and photovoltaic parameters of DSSC fabricated with the film.

Thickness [ $\mu\text{m}$ ]	0.3
$n [\times 10^{21} / \text{cm}^3]$	1.2
$\mu [\text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}]$	7.5
$\rho [\times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}]$	6.9
Transmittance* (%)	84.9
Haze* (%)	14.7
$J_{\text{sc}}$ ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )	15.3
$V_{\text{oc}}$ (V)	0.71
FF	0.58
$\eta$ (%)	6.3

\*Average value in the visible light region with a glass substrate.

### 4. まとめ

本研究では、マイクロ波照射下での金属酸化物の自己発熱を利用して ITO 透明導電膜を作製し、DSSC へ応用した。マイクロ波加熱法による短時間焼成により ITO 膜の劣化が抑制され、ITO 膜の DSSC への利用の可能性が示された。

1) 大橋 他, 2014 年 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-A11-16.

2) 鈴木 他, 2019 年 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 21p-C310-3.

3) M. Okuya et al., J. Am. Ceram. Soc., 101, 5071-5079 (2018).