

混合スペーサーカチオンを用いたスズペロブスカイト太陽電池界面 における電荷移動の直接観測

Direct observation of the charge transfer at the interface of
tin-based perovskite solar cells with mixed spacer cations

筑波大数物¹, 筑波大エネ物質科学セ²

○陳 奕舟¹, 山口 世力¹, 佐藤 睦¹, 薛 冬¹, 丸本 一弘^{1,2}

Univ. of Tsukuba¹, TREMS, Univ. of Tsukuba²

○Yizhou Chen¹, Seira Yamaguchi¹, Atsushi Sato¹, Dong Xue¹, Kazuhiro Marumoto^{1,2}

E-mail: s2120376@s.tsukuba.ac.jp, marumoto@ims.tsukuba.ac.jp

【序論】スズペロブスカイト太陽電池は低コスト、フレキシブル、環境負荷が少ないなどの利点を持つため、次世代太陽電池として期待されている。しかし、Sn(II)が酸化されやすいという問題があるため、スズペロブスカイト太陽電池の変換効率と寿命は鉛ペロブスカイト太陽電池と比べて未だ低い。それに対し、Sn(II)の酸化を抑制し、素子の効率と耐久性を向上させる方法の1つとして、2-Phenylethylammonium (PEA⁺)と butylammonium (BA⁺)の混合スペーサーカチオンを導入する研究が行われている^[1]。これまで、我々は電子スピン共鳴 (ESR) 法を用いて、有機太陽電池や、鉛ペロブスカイト太陽電池の材料や素子について研究し、その電荷状態を調べてきた^[2,3]。そこで、本研究では、PEA⁺とBA⁺の混合スペーサーカチオンを添加したスズペロブスカイトを用いて、太陽電池素子や積層膜試料を作製し、ESR 法により、太陽電池界面における電荷状態について調べた。

【実験】本研究で用いたスズペロブスカイト太陽電池素子の構造は ITO/PEDOT:PSS/(BA_{0.5}PEA_{0.5})₂FA₄SnI₃/C₆₀/BCP/Ag である (Fig. 1)。PEDOT:PSS とペロブスカイトはスピンコーティング法により、フラーレン、BCP、Ag は真空蒸着法により製膜した。作製した素子や積層膜試料を窒素雰囲気下で封止し、暗状態と疑似太陽光照射下で ESR 測定を行った。

【結果と考察】Fig. 2a は室温で測定された太陽電池素子の疑似太陽照射下の ESR スペクトルである。得られた g 因子 ($g = 2.0028$) により、PEDOT:PSS の正孔 (ポーラロン) 由来の信号であると同定した。Fig. 2b はオペランド ESR 測定から得たスピンの数 (N_{spin}) と素子の開放電圧 (V_{oc}) の相関を示す。疑似太陽照射下で、PEDOT:PSS の N_{spin} が最初の数時間に増加し、その後、ほぼ一定値を示した。これはペロブスカイトの価電子帯の電子が光エネルギーを得て伝導帯に励起され、電子の擬フェルミ準位が上昇し、積層界面における擬フェルミ準位の差を緩和する過程でペロブスカイト層から PEDOT:PSS 層へ電子が移動し、その結果、PEDOT:PSS のバイポーラロンがポーラロンになったことに起因すると考えられる。素子の V_{oc} の向上は、上述の逆電子移動により PEDOT:PSS とペロブスカイトの界面で電子障壁が生じたことに起因すると考えられる。

[1] J. Qiu *et al.*, *ACS Energy Lett.* **4** (2019) 1513. [2] D. Xue *et al.*, *ACS Appl. Energy Mater.* **3** (2020) 2028.

[3] T. Watanabe *et al.*, *Commun. Mater.* **1** (2020) 96.

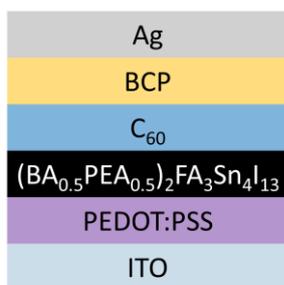


Fig. 1. Schematic cross-section of a tin-based solar cell used in this study.

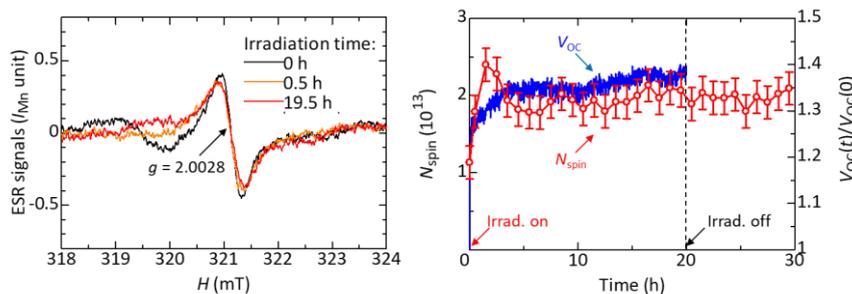


Fig. 2. (a) ESR spectra of the cell under dark condition and simulated solar irradiation. (b) Transient response of the number of spins (N_{spin}) and open-circuit voltage (V_{oc}) of the cell to simulated solar irradiation.