

平成 26 年度工学系共通経費による顕彰と研究助成 成果報告書

所 属	理工学研究科 応用化学専攻
研究者 (ふりがな)	和田 雄二 ( わだ ゆうじ )
タイトル	マイクロ波迅速結晶化プロセスによる高効率無機ハイブリッド塗布型太陽電池
助 成 名	創成的研究賞
採択金額	1,500,000 円
研究の背景	<p>全世界の一次エネルギーのうち数 TW を供給する太陽光発電技術として、実用レベルの革新的な低コスト(コスト &lt;40 円/W) 高効率 (15%以上) 太陽電池が鍵となる。我々は、活性層を全て塗布形成できる、有機・無機ハイブリッド太陽電池を、長期安定かつモジュール変換効率 15%以上を目指すデバイス材料技術として、大量生産するデバイスプロセス技術の革新を提案する。この有機・無機ハイブリッド太陽電池は最高効率 20.1%が認証値、さらに実験室レベルでは 21%以上という、ここ数年で急速に発展する塗布型固体太陽電池である。この高い変換効率が注目される一方で、実用化において大きな障壁となっている点は、セルの耐久性が極めて低いこと、大面積化に向けたプロセスが確立されていないことが挙げられる。本提案では、実用化に向けて劣化の原因となる結晶欠陥に由来するトラップドキャリアの低減と、大面積セルプロセスに向けた迅速高品質半導体結晶化プロセスを構築する。</p>
結果と考察	<p>まず研究を進めるにあたり、最初の課題としてペロブスカイト太陽電池デバイスの作成に取り組んだ。本系においては、未だ実際の研究が始まって数年しか経ておらず、20%の変換効率が報告されている一方で、論文レベルでの手法では十分な再現性が得られていないことが広く知られている。したがって、系統的な学術研究を行う上で、研究室内でデバイスプロセスの最適化による中程度の効率を得ることが最初の課題である。結晶性の高いためデバイス特性およびデバイス再現性が比較的高い、H. Segawa らの既報を参考とし、種々のデバイスプロセス因子を最適化することで、光電変換効率 14%を最高とし、平均値で 12%を示す、ペロブスカイト太陽電池デバイスの作成技術を確立した。</p> <p>次にこの手法を用いて第一の課題である、秩序構造を導入したナノ構造酸化物半導体電極に適用した。具体的には、異方性酸化物ナノ粒子の露出結晶面を制御し異方性のナノ結晶をマイクロ波水熱反応により合成し、これを用いて塗布溶液を作成し、この溶液をスピコーターで塗布焼成することにより、一軸方向に配向制御されたナノポーラス酸化チタン電極を作成した。主要結晶面を大きく露出させることで高表面の有機修飾粒子表面と分散溶媒との相界面におけるゆるい分子間相互作用により、一定の間隔を隔てて自己集成的に一軸配向した積層体を形成し、高秩序酸化物ナノ構造を形成する。この焼成した酸化チタンを用いて、一段階法によりペロブスカイト結晶を析出させ、これにホール輸送層および金蒸着による対極を形成し、ペロブスカイト太陽電池を形成した。表面修飾有機材料を添加せずにスピコートした酸化チタンでは、基板と水平な方向へ配向するのに対し、本提案の有機修飾酸化チタン板状結晶では基板に対して垂直方向に配向した酸化チタン粒子が多く SEM 観察により確認された。X線回折からも同様に基板に平行および非平行な板状酸化チタン粒子の配向が確認された。さらにこの二種の酸化チタンポーラス電極を用いたペロブスカイト太陽電池を作成し、その特性を解析した。この結果より、酸化チタンの配向に依存して、太陽電池特性が顕著に違うことが示され、このようなメソポーラス電極構造のモルフォロジが太陽電池特性に大きく影響することが明らかとなった。</p> <p>さらに、マイクロ波の異種材料界面をピンポイントで局所加熱することを利用して、このペロブスカイト太陽電池を</p>

形成するプロセスに導入した。この太陽電池では、種々の薄膜形成において、加熱を必要とするため、例えばフレキシブルプラスチック基板など、高温に耐えられない基材への適用は難しい。マイクロ波による精密制御アニーリングにより、多結晶ペロブスカイト半導体の粒界接合を狙う検討を当初行う予定であったが、ペロブスカイト太陽電池の作成条件検討に時間を要したため、まず、500℃以上の高温焼結プロセスを必要とする、ペロブスカイト太陽電池のn型半導体層になる酸化チタン層の低温焼結における、マイクロ波加熱アニーリングの効果について検証した。酸化チタンメソポーラス層の形成にマイクロ波加熱を利用し、酸化物半導体の低温焼成(200℃)を行い、これを用いて、類似構造である塗布型太陽電池の色素増感太陽電池に適用した。結果として、通常の焼成方法と比べて、2倍近くの光電変換効率向上を、太陽電池デバイスにて確認した。この結果から、マイクロ波の特に酸化チタン-基材界面への選択的な加熱により薄膜界面での接合性が向上し、電流値の向上による太陽電池特性の向上が現れたと考える。

結論と今後の課題

本研究期間中に明らかになったこととして、以下の3点が挙げられる。①プレーナー構造を有するペロブスカイト太陽電池において、一段階法を用いてペロブスカイト結晶を形成し、これにより最高変換効率で14%を超える太陽電池の作成に成功した。②酸化物半導体電極に秩序構造を導入したナノ構造を構築することにより、ペロブスカイト結晶の特性が大きく影響を受け、結果として太陽電池効率が大きく違うことが確認された。③マイクロ波を用いた酸化物半導体の低温焼成(200℃)を利用して類似構造である塗布型太陽電池の色素増感太陽電池に適用し、通常の焼成方法と比べて、2倍近くの変換効率向上を確認した。今後の課題としては、検証した太陽電池構造の効果の原理を明らかにすることが、より高効率なペロブスカイト太陽電池開発に必須である。さらには、酸化チタンの良好な電子物性をマイクロ波焼成にて得られることを確認したため、この酸化チタン薄膜をペロブスカイト太陽電池に適用して、フィルム型太陽電池として特性を検証すること、さらには、同様のマイクロ波加熱をペロブスカイト結晶の結晶化プロセスに応用することで、ペロブスカイト結晶の層転移を精密制御して、ペロブスカイト結晶間の良好な接合を達成し、粒界の究極的な低減を目指す。さらには、半導体結晶面制御と原子層堆積を利用した、酸化物半導体表面の修飾を精密にコントロールすることで、究極の界面形成によるペロブスカイト太陽電池のさらなる効率向上と、デバイス安定性の向上を目指すことを次の研究の展開と考え現在推進している。

使用内訳書

費目	内訳	金額
備品1	マイクロ波シングルモードアプリアケーター	331,560
備品2		
消耗品	化学試薬類、ボンベ、PC 他	666,464
旅費	学会参加費	106,828
その他	人件費	395,148
合計		1,500,000

記入上の注意：

備品は、品名ごとに記入。

差額が生じた場合は、消耗品で調整。

消耗品を購入しなかった場合は、経費の差額と補填した予算科目名を合計額の内訳欄に記入。