

# 塗布法による半透明ペロブスカイト太陽電池の実用化に関する研究

[研究代表者] 清家善之 (工学部電気学科)

[共同研究者] 森竜雄、田岡紀之、一野祐亮 (工学部電気学科)

加藤幹大、瀬川大司、明永裕樹 (旭サナック株式会社)

## 研究成果の概要

ペロブスカイト太陽電池は実用化に向けて広く研究され、注目を浴びている。2009年に桐蔭横浜大学の宮坂力教授らより報告された  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  を用いたこの太陽電池は、当初 3.9% の発電効率であったが、近年研究では発電効率 26.1% が報告がされており、シリコン型太陽電池に迫るものとなった。またこの太陽電池はフレキシブルで軽量の太陽電池が作製可能であるため、ロール・ツー・ロールで製作が進んできている。このロール・ツー・ロールでのペロブスカイト太陽電池の製膜では、基板を回転させるスピコートはできないため、スクリーン印刷法、ダイコート法、バーコート法による方法が提案されている。またフレキシブルな太陽電池にはポリエチレンナフタレート (PEN) やポリエチレンテレフタレート (PET) の樹脂基板が用いられている。本研究では、このロール・ツー・ロールでの製膜を視野に置き、スプレー塗布を中心とした all 塗布製膜でペロブスカイト太陽電池の作製技術の確立を目標とする。ペロブスカイト層を製膜する際に、ペロブスカイト層を製膜後、溶媒抽出を行う必要がある。溶媒抽出の方法には、貧溶媒を用いたアンチソルベント法や浸漬処理が主流である。しかし、フレキシブル基板を用いて溶媒抽出に使用する場合、この貧溶媒が樹脂基板を膨潤させてしまう課題がある。そこで、本年度の研究では溶媒抽出・結晶成長に二流体スプレー処理を用いてペロブスカイト膜を製膜し、太陽電池特性を評価した。

**研究分野：**電気電子材料、電子デバイス製造プロセス、品質工学

**キーワード：**ペロブスカイト太陽電池、スプレー法、フレキシブル基板、ロール・ツー・ロール (R2R)

### 1. 研究開始当初の背景

ペロブスカイト太陽電池は実用化に向けて広く研究され、注目を浴びている。2009年に桐蔭横浜大学の宮坂力教授らより報告された  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$  を用いたこの太陽電池は、当初 3.9% の発電効率であったが、近年研究では発電効率 26.1% が報告がされており、シリコン型太陽電池に迫るものとなった。またこの太陽電池はフレキシブルで軽量の太陽電池が作製可能であるため、ロール・ツー・ロールで製作が進んできている。このロール・ツー・ロールでのペロブスカイト太陽電池の製膜では、基板を回転させるスピコートはできないため、スクリーン印刷法、ダイコート法、バーコート法による方法が提案されている。またフレ

キシブルな太陽電池にはポリエチレンナフタレート (PEN) やポリエチレンテレフタレート (PET) の樹脂基板が用いられている。

また、ペロブスカイト層を製膜する際に、ペロブスカイト層を製膜後、溶媒抽出を行う必要がある。溶媒抽出の方法には、貧溶媒を用いたアンチソルベント法や浸漬処理が主流である。しかし、フレキシブル基板を用いて溶媒抽出に使用する場合、この貧溶媒が樹脂基板を膨潤させてしまう課題がある。

### 2. 研究の目的

本研究では、ロール・ツー・ロールでの製膜を視野に置

き、スプレー塗布を中心とした all 塗布製膜でペロブスカイト太陽電池の作製技術の確立を目標とする。

### 3. 研究の方法

我々が製作する逆構造型ペロブスカイト太陽電池は、入射光側から透明電極、酸化インジウム酸化物の混合物である (Indium Tin Oxide, ITO)、正孔輸送層 (p 型半導体)、(poly(3,4-ethylenedioxythiophene) polystyrene sulfonate, (PEDOT-PSS))、ペロブスカイト層、電子輸送層 (n 型半導体)、(Phenyl-C61-butyric acid methyl ester)、金属電極の順の順で製膜している。

本研究では、ペロブスカイト層を製膜する際に行う、溶媒抽出・結晶成長に二流体スプレー処理で行った。ペロブスカイト液膜形成後、二流体スプレーを用いてジエチルエーテル (DEE) を液膜上に噴霧することで溶媒抽出の作用を促す。スピコート時の回転数を 5000 rpm、6000 rpm、8000 rpm の 3 条件で液膜を形成し、スプレーリットメント法の評価を行った。前駆実験として DEE を用いた溶媒抽出を行った。

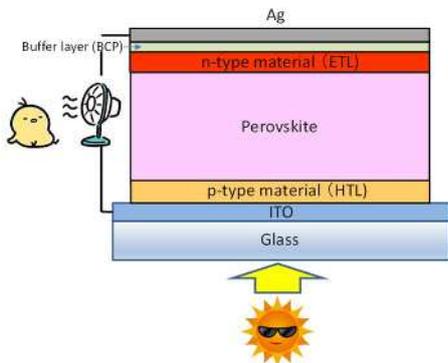


図 1 逆構造型ペロブスカイト太陽電池の構造の一例

### 4. 研究成果

図 2 にスプレーリットメント法で溶媒抽出を行った素子の J-V 特性結果を示す。回転数 5000 rpm の条件では、未反応の  $PbI_2$  によって太陽電池として機能しないことが確認された。回転数 6000 rpm に関しては、5.31 %の変換効率が確認され、前駆実験の 5.49 %に匹敵する変換効率が得られた。回転数 8000 rpm は膜厚の減少によって、開放電圧が減少したが、3.05 %の変換効率が得られた。このことから、本手法はスプレーを用いているため、ロール・ツー・ロール法によるペロブスカイト層の製膜が可能であり、さらに液膜形成時の回転数の変化によって容易に膜厚の

調整が可能であると結論付けた。

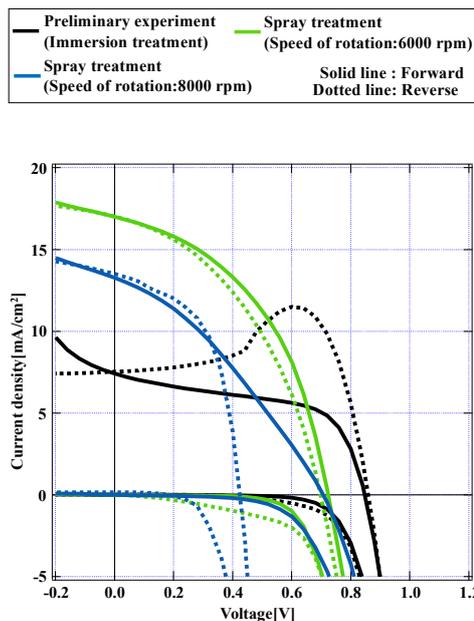


図 2 スプレーリットメント法を用いた素子の J-V 特性

### 5. 本研究に関する発表

1. 清家善之：ペロブスカイト太陽電池の高付加価値化への取り組み、車載テクノロジー、11(5) pp7-11. (2024 年 2 月)
2. Yuya Isogawa, Keishiro Goshima, Yusuke Ichino, Noriyuki Taoka, Tatsuo Mori, Yoshiyuki Seike: Characteristics of Inverse-structured Perovskite Solar Cells with Bragg Reflectors, 13th International Symposium on Organic Molecular Electronics (ISOME2024), O-01
3. Kensei Ueyama, Yuki Ikumi, Tatsuo Mori, Yusuke Ichino, Noriyuki Taoka, Taishi Segawa, Mikio Kato, Ryosuke Usui, Keiji Miyachi, Yoshiyuki Seike: Solvent Extraction Using Two-fluid Spray After Perovskite Layer Deposition, 13th International Symposium on Organic Molecular Electronics (ISOME2024), P-29, (Hyogo Japan). 2024/5/29
4. Taishi Segawa, Yuta Kato, Kensei Ueyama, Yoshiyuki Seike: Relationship between Morphology and Conductivity of PEDOT/PSS Thin Films Coated by Air Spray, 13th International Symposium on Organic Molecular Electronics (ISOME2024), P-02, (Hyogo Japan). 2024/5/29
5. 生見勇輝、上山堅成、清家善之：塗布法によるペロブスカイト太陽電池の実用化に関する研究、旭サナック株式会社 NC 技術大会、4. 2023/12/8