

令和 2 年 6 月 18 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07037

研究課題名(和文) スマートスタックによるペロブスカイト/結晶Siタンデム太陽電池の実現

研究課題名(英文) Enabling perovskite/silicon tandem solar cells by smart stack

研究代表者

水野 英範 (Mizuno, Hidenori)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員

研究者番号：90581281

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：現太陽電池市場の主役である結晶Siは、異種材料とのタンデム化により飛躍的な変換効率向上が可能である。我々は、結晶Si太陽電池作製技術、ペロブスカイト太陽電池作製技術、異種太陽電池接合技術(スマートスタック)を有しており、これらをベースに将来的に高効率かつ低コストを実現するためのペロブスカイト/結晶Si タンデム太陽電池の開発に着手した。その第一歩として、本研究では良好なタンデム構造・特性を得るためのスマートスタック条件を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在最も利用が進んでいる結晶シリコン太陽電池は、研究開発レベルにおいてはその性能(変換効率)の限界が迫りつつあり、異種材料との融合(タンデム化)による変換効率の向上が求められている。本成果は、異種材料として安価に入手可能なペロブスカイト材料とのタンデム化を独自技術であるスマートスタックにより容易に行うものであり、今後さらに広がる太陽電池の応用先・可能性を広げるものである。

研究成果の概要(英文)：Crystalline Si, which is the main player in the current solar cell market, can dramatically improve the conversion efficiency by integrating with different materials. We have been developing the fabrication technology of crystalline Si solar cells, perovskite solar cells, and smart stack, a technology to bond different types of solar cell using metal nanoparticle arrays. We therefore started to develop smart stack-based perovskite/crystalline Si tandem solar cells to realize both high efficiency and low cost. As a first step, this study focused on finding optimal conditions for smart stack to realize good tandem structures and characteristics.

研究分野：太陽光発電

キーワード：太陽電池 結晶シリコン ペロブスカイト 多接合 タンデム

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在の太陽電池市場における材料別シェアでは、結晶Siが90%以上と圧倒的である。結晶Si太陽電池の高効率化については、既に変換効率が25%を上回る幾つかの報告がある。しかしながら、変換効率にはバンドギャップに基づく理論的な上限が存在し、結晶Si (1.12 eV) では29%程度であると言われている。こうした理論限界を打破するためのアプローチとして、結晶Siとは異なる太陽電池を積層させたタンデム型太陽電池がある。今後太陽電池の更なる高効率化を達成し新たな応用先を開拓するためには、結晶Siをベースとした実用的なタンデム型太陽電池の開発が求められていた。

2. 研究の目的

実用的な結晶Siベースのタンデム型太陽電池を開発するためには、結晶Siのパートナーとなる材料を選定し、そのタンデム化手法を確立する必要がある。本研究では、近年急速に開発が進んでいるペロブスカイト太陽電池を結晶Siのパートナーとして用い、両者の貼り合せという簡便な手法によってタンデム化が実現できる可能性を示すことを目的とした。

3. 研究の方法

貼り合せによる簡便なタンデム化手法として、独自技術である「スマートスタック」を用いた。スマートスタックとは、ブロック共重合体の自己組織化特性を利用して作成できる金属ナノ粒子配列を接合媒体として用い、各種太陽電池を電気的かつ光学的に接合する技術である(図1)。本研究の以前にはGaAs等III-V族系太陽電池と結晶Si太陽電池のスマートスタックを実現していた。そこで本研究では、III-V族材料の代わりにペロブスカイト材料を用い、良好なスマートスタックを行うための条件(前処理、温度、荷重量等)の探索を行った。

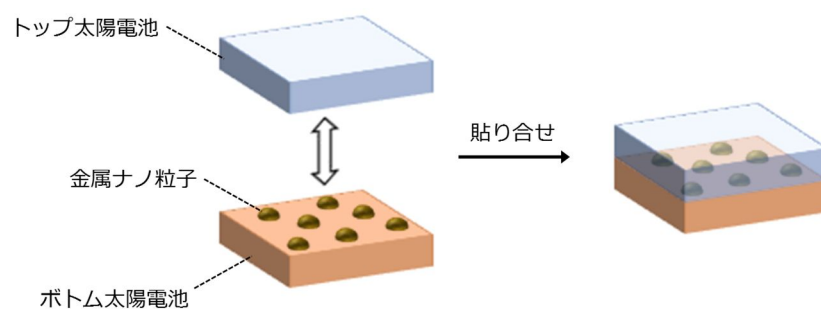


図1: スマートスタックの概念図

4. 研究成果

(1) ITO (透明電極) 基板と結晶Si太陽電池のスマートスタック

本研究におけるペロブスカイト太陽電池はITO基板上に作製することを想定していたため、ペロブスカイト太陽電池とのスマートスタックに先立ちITO基板とのスマートスタックを検討することにより基板-基板間の貼り合せにおける課題の抽出を試みた。

結晶Si太陽電池の作製には、両面が鏡面研磨されたp型基板を用いた。POCl₃の熱拡散、裏面

のスピネッチング、Al ペースト印刷・焼成により、裏面側にのみ電極を有する結晶 Si 太陽電池を調製した。その後、表面側に Pd ナノ粒子配列を作製した。

ITO 基板と結晶 Si 太陽電池のスマートスタックには、荷重量モニター・加熱機構・平行出し機構を装備した万力プレス機を用いた。初めに荷重と加熱による貼り合せを検討したところ、最大の荷重量 (~500 N)・温度 (~200 °C) をかけた場合においても接合体を得ることはできなかった。したがって、Pd ナノ粒子配列単独ではこの場合は接合媒体として機能しえないことが明らかとなった。

そこで、接合界面に極薄のポリマー層を導入することで接合力を強化することを試みた。ポリマーとしては、ポリスチレン、ポリ-4-ビニルピリジンの 2 種類を検討したところ、両者ともに接合体を得ることに成功した (図 2)。こうして、表面電極に ITO 透明電動膜を有する結晶 Si 太陽電池を両者の貼り合わせという手法で作成することができた。太陽電池特性としては、短絡電流密度 21.3 mA/cm²、開放電圧 0.569 V、曲線因子 0.591、効率 7.2% という結果であった。なお、ポリスチレンとポリ-4-ビニルピリジンの違いによる特性への顕著な影響は確認されなかった。

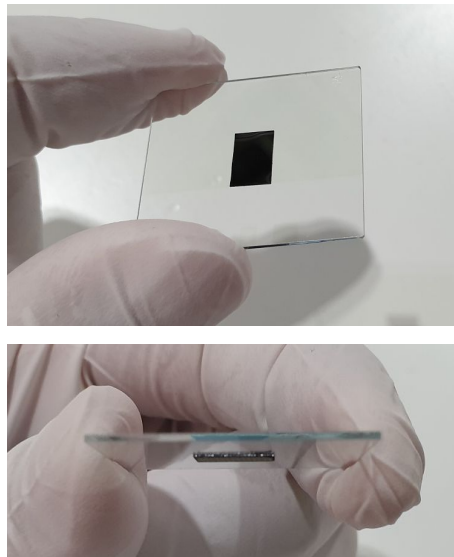


図 2 : ITO/結晶 Si スマートスタック接合体 (セル) の写真

(2) ペロブスカイト膜の平坦化

(1) において見出した貼り合せ (改良スマートスタック) 手法を ITO 基板上に製膜したペロブスカイト太陽電池と結晶 Si 太陽電池のタンデム化へと適用した。

ペロブスカイト太陽電池層は、ITO 基板に電子輸送層として SnO₂ ナノ粒子層を形成した後、2 段階溶液法 (PbI₂ CH₃NH₂I) により CH₃NH₃PbI₃ 層を形成した。その後、ホール輸送層として poly(bis(4-phenyl)(2,4,6-trimethylphenyl)amine (PTAA) 層を形成した (いずれもスピネッチングを使用)。

ポリ-4-ビニルピリジンを接合補助剤として使い、Pd ナノ粒子配列修飾結晶 Si 太陽電池とのスマートスタックを試みたところ、接合体が得られることは確認できた。しかしながら、その太陽電池特性は期待していたようなタンデム特性とはならず、疑似太陽光照射下においても通電が確認されなかった。この原因としては、上記の手法で得られるペロブスカイト (CH₃NH₃PbI₃) 層は下地の ITO 基板と比較して非常に大きな凹凸があり、結晶シリコン太陽電池 (Pd ナノ粒子配列) とは電気的な接触がなされていない可能性が考えられた。

そこで原子間力顕微鏡 (AFM) による表面形状の比較を行ったところ、ITO 基板の粗さ (2 乗

平均粗さ)は 0.715 nm であったのに対し、上記手法で得られたペロブスカイト層の粗さは 188 nm であることが確認された(図 3)。したがって、電気的な接合を達成するためにはペロブスカイト層の平坦化が必要であることが示唆された。

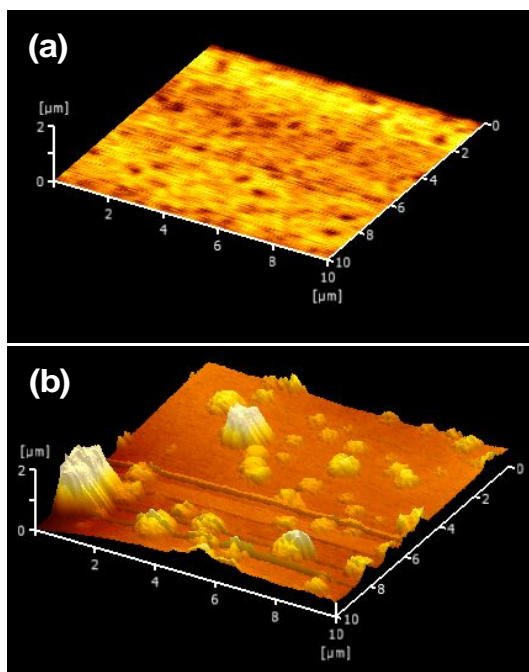


図 3 : AFM イメージ (a) ITO 基板表面 (b) ITO 基板表面に作製したペロブスカイト層表面

ペロブスカイト層の平坦化のため、結晶 Si 基板の押しつけを試みた。1H,1H,2H,2H-Perfluorooctyltrichlorosilane 単分子膜を形成した鏡面研磨結晶 Si 基板を 500 N、80 °C でペロブスカイト層に 1 時間押し付けたところ、表面の凹凸が改善し 2 乗平均粗さが 7.2 nm まで低下した(図 4)。

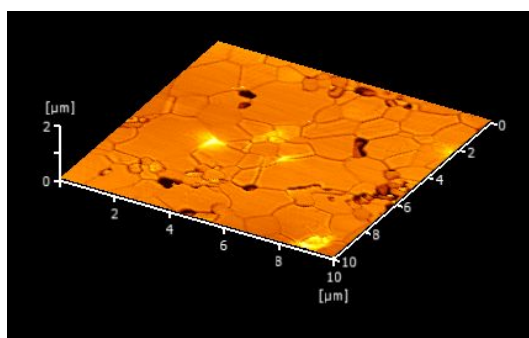


図 4 : 平坦化を施したペロブスカイト層表面の AFM イメージ

(3) ペロブスカイト/結晶 Si スマートスタック太陽電池

(2) で得られた平坦化ペロブスカイト層上に PTAA 層を形成し、Pd ナノ粒子配列修飾済結晶 Si 太陽電池との改良スマートスタックを試みた。しかしながら、この場合の太陽電池特性は短絡電流密度 6.54 mA/cm²、開放電圧 0.499 V、曲線因子 0.274、効率 0.89% という結果であり、特に開放電圧は結晶 Si 太陽電池単体の場合と同等の値であったことから、望むようなタンデム化がなされていないことが明らかとなった。

そこで、PTAA 層をペロブスカイト層上ではなく Pd ナノ粒子配列修飾済結晶 Si 太陽電池上に形成し、改良スマートスタック法によるタンデム化を行った。その結果、短絡電流密度 7.08

mA/cm²、開放電圧 1.51 V、曲線因子 0.217、効率 2.3%という太陽電池特性が確認され、開放電圧の値はペロブスカイト太陽電池と結晶 Si 太陽電池それぞれの開放電圧値の和とほぼ同等となることが確認できた。つまり、2つの太陽電池の直列タンデム化が可能であることが確認された。他方で、曲線因子は非常に小さく、接合界面の電気特性には大きな改善の余地があることを示唆した。今後はペロブスカイト層の平坦化の面内均一性や接合条件・接合補助剤等の検討を行い、接合界面電気特性（曲線因子）の改善と変換効率の向上を行う予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tayagaki Takeshi, Makita Kikuo, Oshima Ryuji, Mizuno Hidenori, Sugaya Takeyoshi	4. 巻 27
2. 論文標題 Impact of nanometer air gaps on photon recycling in mechanically stacked multi-junction solar cells	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 A1 ~ A1
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.27.0000A1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Takeshi Tayagaki, Hidenori Mizuno, Kikuo Makita, Ryuji Oshima, and Takeyoshi Sugaya
2. 発表標題 Impact of Nanometer Air Gap on Photon Recycling in Mechanically Stacked Multijunction Solar Cells
3. 学会等名 International Conference on Solid State Device and Material（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hidenori Mizuno, Kikuo Makita, Hitoshi Sai, Takuya Matsui, Tetsuhiko Miyadera, Takeshi Tayagaki, Toshimitsu Mochizuki, Ryuji Oshima, Takeyoshi Sugaya, Hidetaka Takato
2. 発表標題 Smart Stack Technology for Si-Based Tandem Solar Cells
3. 学会等名 2019 MRS Fall Meeting（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
研究分担者	宮寺 哲彦 (Miyadera Tetsuhiko) (30443039)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員 (82626)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	沙拉木江 司馬依 (Simayi Shalamujiang) (20795166)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領 域・産総研特別研究員 (82626)	辞退（2019年3月）