

未来社会創造事業 探索加速型  
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域  
年次報告書(本格研究期間)

令和4年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:若宮 淳志]

[京都大学化学研究所・教授]

[研究開発課題名:Sn からなる Pb フリーペロブスカイト太陽電池の開発]

実施期間 : 令和4年4月1日～令和5年3月31日

## §1. 研究開発実施体制

### (1)「若宮」グループ(京都大学)

① 研究開発代表者:若宮 淳志 (京都大学化学研究所、教授)

#### ② 研究項目

- ・高出力化:材料・デバイス開発
- ・高耐久化:材料・封止技術開発
- ・タンデム化:材料・デバイス開発
- ・材料・デバイスの特性評価

### (2)「早瀬」グループ(電気通信大学)

① 主たる共同研究者:早瀬 修二 (電気通信大学インフォ・パワードエネルギー・システム研究センター、教授)

#### ② 研究項目

- ・高出力化:材料・デバイス開発
- ・高耐久化:材料・封止技術開発
- ・タンデム化:材料・デバイス開発

### (3)「大北」グループ(京都大学)

③ 主たる共同研究者:大北 英生 (京都大学大学院工学研究科、教授)

#### ④ 研究項目

- ・光物性測定の実験
- ・材料・デバイスの特性評価

### (4)「佐伯」グループ(大阪大学)

① 主たる共同研究者:佐伯 昭紀 (大阪大学大学院工学研究科、教授)

#### ② 研究項目

- ・高出力化:材料・デバイス開発
- ・TRMC の測定
- ・材料・デバイスの特性評価
- ・機械学習を用いた新規材料の探索と開発

### (5)「丸本」グループ(筑波大学)

① 主たる共同研究者:丸本 一弘 (筑波大学数理物質系、教授)

#### ② 研究項目

- ・ESR のオペランド測定

・材料・デバイスの特性評価

(6)「沈」グループ(電気通信大学)

① 主たる共同研究者:沈 青 (電気通信大学大学院情報理工学研究科、教授)

② 研究項目

③ ・高出力化:材料・デバイス開発

・材料・デバイスの特性評価

(7)「飯久保」グループ(九州大学)

④ 主たる共同研究者:飯久保 智 (九州大学大学院総合理工学研究科、教授)

⑤ 研究項目

・理論計算を用いた材料探索

・材料・デバイスの特性評価

(8)「吉田」グループ(千葉大学)

⑥ 主たる共同研究者:吉田 弘幸 (千葉大学大学院工学研究院、教授)

⑦ 研究項目

・表面・界面物性測定(UPS、MAES、LIPES 等)

・材料・デバイスの特性評価

## §2. 研究開発成果の概要

Sn 系ペロブスカイト半導体を用いた光電変換特性の向上を目指して、材料開発を中心に取り組んだ。光電変換材料として、 $\text{ASnX}_3$  型の3次元ペロブスカイトに加えて、これに PEAI などを 15mol%程度加えた、2D-3D 混合型のペロブスカイトを用いたデバイスの作製とその評価を進めた。

Pb 系と比べて、光電変換特性が低くとどまっている原因のうち、今年度は特に Sn 系ペロブスカイト半導体に用いるイオン組成の効果と表面構造の効果、さらに電荷回収材料の開発に焦点をあて、新材料開発とそれらの構造-物性相関の解明を行なった。Sn-Pb 混合系のペロブスカイト層の上下表面パッシベーション法として、独自の材料と手法開発を行い、各電荷の取り出しに有利に働くダイポール戦略を提唱し(A. Wakamiya, K. Marumoto, et al. Energy Environ. Sci. 2022(代表論文 1)), A. Wakamiya, et al. Adv. Mater. 2023 など)、その効果を実証した。電子回収層との界面には、 $\text{EDAI}_2$  のように、ペロブスカイト表面に  $\delta+$  の電荷を持たせることが有用であり、これが Sn 系ペロブスカイトの開放電圧の向上にも有効に機能する一般性を見出した(A. Wakamiya, et al. ACS Appl. Mater. Interfaces, 2022)。

また、 $\text{ASnX}_3$  の Sn 系ペロブスカイトに用いる組成のうち、A サイトおよび X サイトに用いるイオンの組み合わせの効果、について、時間分解マイクロ波伝導度法(TRMC, A. Saeki, A. Wakamiya, et al. ACS Mater. Lett. 2022, (代表論文 2)) や蛍光強度、寿命測定を独自のプローブ(A. Wakamiya, ACS Appl. Energy Mater. 2022)として用いて、より高効率な光電変換特性を与える Sn 系ペロブスカイト半導体を見出した。

さらに、従来電子回収層として用いられてきた  $\text{SnO}_2$  が作製条件によって、正孔回収層として用いられることを見出し、これを用いた Sn 系ペロブスカイト太陽電池で 14%を超える光電変換特性が得た(S. Hayase, Q. Shen, et al., ACS Energy Lett. 2022, (代表論文 3))。

【代表的な原著論文情報】

1) S. Hu, K. Otsuka, R. Murdey, T. Nakamura, M. A. Truong, T. Yamada, T. Handa, K. Matsuda, K. Nakano, A. Sato, K. Marumoto, K. Tajima, Y. Kanemitsu, A. Wakamiya, " Optimized Carrier Extraction at Interfaces for 23.6% Efficient Tin-Lead Perovskite Solar Cells"

*Energy Environ. Sci.* **2022**, *15*, 2096. (DOI: 10.1039/D2EE00288D)

(Top 0.1%高被引用論文)

2) L. Wang, M. Chen, S. Yang, N. Uezono, Q. Miao, G. Kapil, A. K. Baranwal, Y. Sanehira, D. Wang, D. Liu, T. Ma, K. Ozawa, T. Sakurai, Z. Zhang, Q. Shen, S. Hayase, " SnOx as Bottom Hole Extraction Layer and Top In Situ Protection Layer Yields over 14% Efficiency in Sn-Based Perovskite Solar Cells"

*ACS Energy Lett.* **2022**, *7*, 3703. (<https://doi.org/10.1021/acseenergylett.2c01659>)

3) E. Nakanishi, R. Nishikubo, F. Ishiwari, T. Nakamura, A. Wakamiya, A. Saeki, "Multivariate Analysis of Mixed Ternary and Quaternary A-Site Organic Cations in Tin Iodide Perovskite Solar Cells"

*ACS Materials Lett.* **2022**, *4*, 1124. (DOI: 10.1021/acsmaterialslett.2c00229)