

二段階蒸着法を用いた $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{Pb}(\text{I}_x\text{Cl}_{1-x})_3$ 薄膜の作製

Fabrication of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{Pb}(\text{I}_x\text{Cl}_{1-x})_3$ thin films using a two-step vapor deposition method

○梶川 剛志、田中 仙君 (近畿大院総合理工)

○Tsuyoshi Kajikawa, Senku Tanaka (Kinki Univ., Grad. Sch. of Sci. and Eng. Res.)

E-mail: senku@ele.kindai.ac.jp

1. 諸言

$\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ を代表とする有機鉛ハライド系ペロブスカイトは、高い変換効率を示す光電変換材料として非常に注目されている。ペロブスカイト薄膜の質は、太陽電池素子のエネルギー変換効率に直接影響するため、高品質なペロブスカイト薄膜の作製方法を確立することは重要である。ペロブスカイト薄膜は様々な方法で作製可能であるが、本研究では、二段階蒸着法に着目した。二段階蒸着法は、ハロゲン化鉛とヨウ化メチルアンモニウム(MAI)を段階的に真空蒸着する作製方法である。真空蒸着法は溶液法に比べて高コストだが、高純度で作製可能、膜構造の制御が容易、多層構造の素子が作製可能という利点を持つ。本研究では、二段階蒸着法におけるハロゲン化鉛と MAI の蒸着条件がペロブスカイト薄膜の性質に及ぼす影響について報告する。

2. 実験方法

二段階蒸着法を用いて、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{Pb}(\text{I}_x\text{Cl}_{1-x})_3$ 薄膜(以下ペロブスカイト)を作製した。まず、 PbCl_2 をガラス基板上に 40 nm 真空蒸着した。次に MAI を PbCl_2 薄膜上に真空蒸着した。このとき、MAI を 26, 70, 120 分の三つの条件で蒸着した。ただし、 PbCl_2 と MAI の膜厚は水晶振動子式膜厚計で観測し、MAI の膜厚は最終的に 360 nm となるように蒸着レートを制御した。また、蒸着前の真空容器内の真空度は、 10^{-4}Pa であったが、MAI 蒸着時の真空度は 10^{-2}Pa 台となった。それぞれの条件で作製されたペロブスカイト層の状態を UV-vis、XRD、および XPS を用いて評価した。

3. 結果・考察

図1に MAI の各蒸着時間で作製したペロブスカイト層の光吸収スペクトル、図2に光吸収スペクトルから見積もった各蒸着時間における膜厚を示す¹⁾。これらの結果は、水晶振動子式膜厚計で見積もった MAI の膜厚を一定にしたにも関わらず、基板上に形成されるペロブスカイト層の膜厚は異なることを示している。図3は MAI の蒸着時間が 26 分と 70 分のペロブスカイト層の XRD パターンである。XRD パターンに現れているペロブスカイトの回折ピーク強度²⁾から MAI の蒸着時間 70 分の試料の方が高い結晶性を持つことが分かる。XPS の測定結果からも、MAI の蒸着時間が長いペロブスカイト層で結晶成長が進んでいることが示された。二段階蒸着法においては、 PbCl_2 と MAI の固相反応によってペロブスカイト層が成長するため、本実験の条件では、数十分単位でペロブスカイト層の成長が進むことがわかった。

4. 参考文献

[1] Y. Jiang *et al.*, Solar Energy Materials and Solar Cells, **137** (2015) 253–257.

[2] Q. Chen *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **136** (2014) 622–625.

5. 謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 26390048 及び、平成 26 年度私立大学戦略的研究基盤形成支援事業の助成を受けたものである。

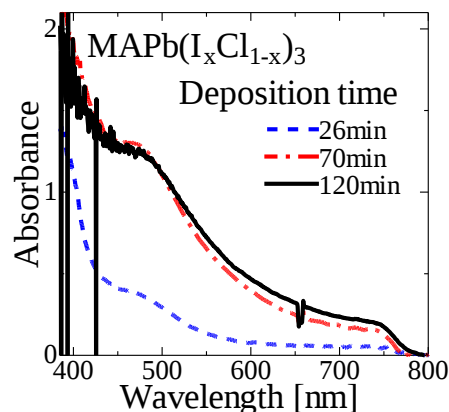


Figure 1. UV-vis absorption spectra of the perovskites.

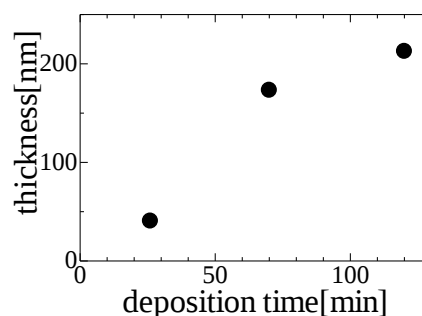


Figure 2. Perovskite film thickness vs MAI deposition time.

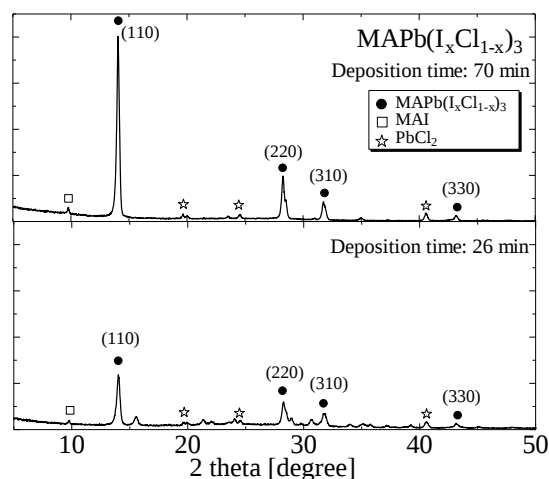


Figure 3. XRD pattern of the perovskites.