

2D-GIWAXS 法による無機系ペロブスカイト薄膜の作製手法の検討

Investigation of the formation process of inorganic lead halide perovskite thin film by

2D-GIWAXS measurement

金沢大院自¹, JASRI², 金沢大 InFiniti³, 金沢大 RSET⁴,
○山本 晃平¹, 米澤 叶祐¹, 小金澤 智之², Md Shahiduzzaman³, 辛川 誠^{1, 3, 4}, 桑原 貴之^{1, 4},
高橋 光信^{1, 4}, 當摩 哲也^{1, 3, 4}
Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa Univ.¹, JASRI²,
Institute for Frontier Science Initiative (InFiniti), Kanazawa Univ.³,
Research Center for Sustainable Energy and Technology (RSET), Kanazawa Univ.⁴,
Kohei Yamamoto¹, Kyosuke Yonezawa¹, Tomoyuki Koganezawa², Md. Shahiduzzaman³,
Makoto Karakawa^{1,3,4}, Takayuki Kuwabara^{1,4}, Kohshin Takahashi^{1,4}, Tetsuya Taima^{1,3,4}
E-mail: k_yama@stu.kanazawa-u.ac.jp, taima@se.kanazawa-u.ac.jp

【緒言】近年、ペロブスカイト太陽電池(PSCs)は 20%を超える高い光電変換効率(PCE)が報告されており大きな注目を浴びている。現在までに、PSCs の高性能化に向け、真空蒸着法を用いて原材料の PbI₂ と CsI を積層し、加熱によりインターカレートさせることで CsPbI₃ ペロブスカイト膜の作製開発を行ってきたが、加熱温度や PbI₂ と CsI の交互積層数により、太陽電池特性への影響が顕著に表れることが分かっている¹⁾。しかし、CsPbI₃ 膜は大気不安定性のために、インターカレート様式や結晶相の変化を同定することが不可能であった。この問題を解決するため、SPring-8 において不活性雰囲気下で 2D-GIWAXS 法により評価を行った。

【実験】素子構造は FTO/TiO₂/CsPbI₃/P3HT/Ag である。CsPbI₃ 膜は PbI₂ 膜を 113 nm、CsI 膜を 87 nm 真空蒸着した後に、350 °C、1 min でアニールを行い、CsPbI₃ 膜を得た。その際、①FTO/TiO₂/PbI₂/CsI、または②FTO/TiO₂/CsI/PbI₂ の 2 通りの積層順序で準備した。

【結果・考察】両素子ともに J_{sc}、V_{oc} の値は同程度の値であったのに対し、②で作製した素子は FF が 36%向上し、PCE も約 3 割向上することが分かった。そこで、CsPbI₃ 膜を 2D-GIWAXS 法で評価したところ、α-CsPbI₃ とは異なる組成を持つ Cs₄PbI₆ が発生していることが分かった。Table 1 に示すα-CsPbI₃/Cs₄PbI₆ の強度比より、①の素子ではα-CsPbI₃ の割合が少なく、②の素子では大幅に増加することが分かった。したがって、Cs₄PbI₆ が不純物として存在し、①の太陽電池性能を低下させる原因になったと考えられる。以上の結果より、積層順序により生成する組成物に変化することが分かり、太陽電池性能にも影響することが示唆される。

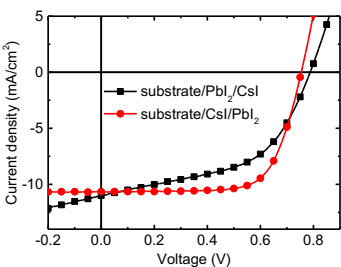


Fig. 1. J-V 曲線

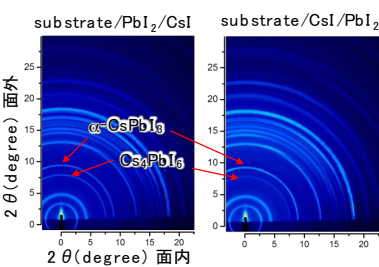


Fig. 2. 2D-GIWAXS 像

Table 1. 太陽電池特性と α-CsPbI₃/Cs₄PbI₆ の強度比

	J _{sc} (m A/cm ²)	V _{oc} (V)	FF	PCE (%)	強度比 α-CsPbI ₃ / Cs ₄ PbI ₆
①	10.99	0.78	0.52	4.43	1.80
②	10.65	0.75	0.71	5.68	5.38

【参考文献】 [1] 米澤叶祐他、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 14a-A41-1 (2016)

【謝辞】 本研究は、パワーアカデミー研究助成、立石科学技術振興財団、加藤科学振興会、池谷科学技術振興財団、岩谷科学技術研究助成、東電財団、東燃ゼネラル石油研究奨励・奨学財団、科研費 16K05882 の支援を受け実施した。