

巨大グレイン MAPbI_{3-x}Cl_x 薄膜の作製と評価

Fabrication and evaluation of giant grain MAPbI_{3-x}Cl_x thin film

岡大院自然, °村上 寛虎, 井上 寛隆, 長岡 瞭太, 近末 悠平, 長谷川 陽一,
羽田 真毅, 西川 亘, 山下 善文, 林 靖彦

Okayama Univ., °Hiroto Murakami, Hirotaka Inoue, Ryota Nagaoka, Yuhei Chikasue,
Yoichi Hasegawa, Masaki Hada, Takeshi Nishikawa, Yoshifumi Yamashita, Yasuhiko Hayashi

E-mail: pf5n9m3s@s.okayama-u.ac.jp, hayashi.yasuhiko@okayama-u.ac.jp

鉛ハライドペロブスカイト化合物は、太陽電池の光吸収層として非常に効果的な特性をもち、現在最も注目されている太陽電池材料である。ペロブスカイト太陽電池の構造は、ペロブスカイト層を酸化チタン多孔質膜電子輸送層上に形成することにより、励起電子を多孔質膜で捉えるメソポーラス構造が主流である。しかし、酸化チタン多孔質膜の形成には 400°C 以上の高温アニールが必要とされ、実用化には不向きである。そこで近年、より簡便な平面ヘテロ接合構造を有するペロブスカイト太陽電池が研究されており、これを実現したのが優れた配向性と 1 μm を超えるキャリア拡散長を持つ MAPbI_{3-x}Cl_x (MAPICl) である。

MAPICl は薄膜のグレインサイズを大きくすることで 18%以上の効率や高い安定性を持つ太陽電池が作製可能で、キャスト法を用いることで 1~2 mm までグレインサイズを拡大できることが報告されている[1]。しかし、キャスト法を用いたいずれの報告も、MAPICl 薄膜の作製には水分を含まない高純度の溶液作製、170 °C 以上の焼成過程や雰囲気との厳密な調整が必要であり、実用化に向けより簡便かつ再現性の高い手法の開発が必要とされる。本研究では MAI と PbCl₂ からなる前駆体溶液を Ar 雰囲気下でガラス基板上にスピコートし、溶媒が揮発する前に大気にさらすことで、H₂O を含む MAPICl 前駆体結晶が結晶核から放射状に成長する現象を発見した。また、この結晶を 80°C でアニールすることで (110)面に配向した高純度の MAPICl 結晶が得られることがわかった。得られた薄膜のグレインサイズは最大約 1 cm であり、水などの不純物を含んだ溶液からも容易に作製可能である。結晶核が形成されるメカニズムについては明らかになっていないが、大気にさらすことで MAPICl 水和物の核が自発的に発生し、核の周辺の同様の物質を取り込みながら成長する現象であると考えられる。Fig.1 に結晶成長中の薄膜の光学顕微鏡像、Fig.2 にアニール前後の基板を示す。

[1] Nie, W. *et al. Science* **347**, 522–525 (2015).

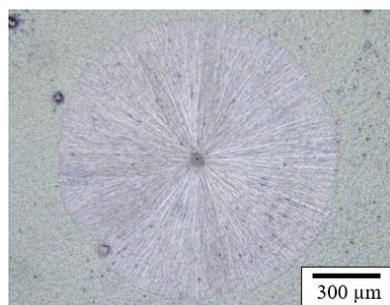


Fig.1 Observation of crystal growth of thin film by optical microscope

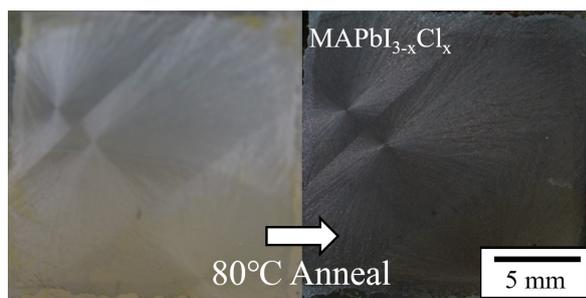


Fig.2 MAPICl giant grain thin film prepared at substrate temperatures of 80 °C