

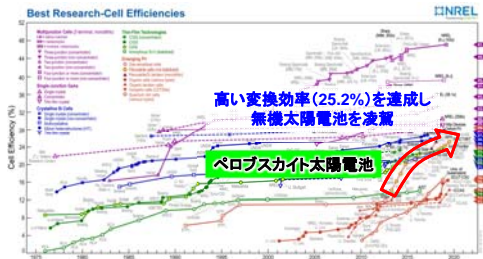
# 金属ハライドペロブスカイトの結晶成長

宮寺 哲彦<sup>1</sup>・山本 晃平<sup>1</sup>・阿内 悠人<sup>2,1</sup>・大橋 昇<sup>1</sup>・小金澤 智之<sup>3</sup>・吉田 郵司<sup>1</sup>・近松 真之<sup>1</sup>

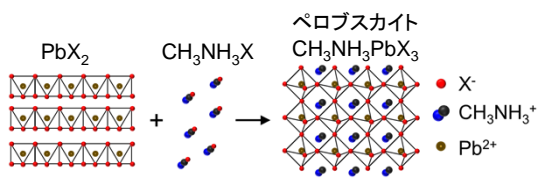
<sup>1</sup>産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター, <sup>2</sup>埼玉大学, <sup>3</sup>高輝度光科学研究センター

## 研究背景

### ペロブスカイト太陽電池



簡便なプロセス(溶液or真空蒸着)が特徴

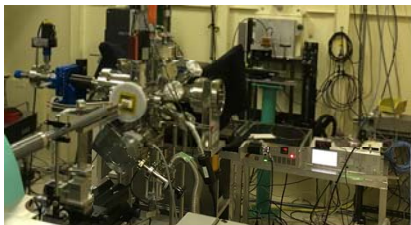


製膜制御および再現性が課題

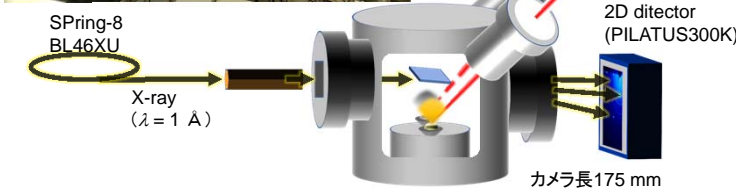
**Focus of this study**  
ペロブスカイト結晶形成過程のリアルタイム解析により結晶化メカニズムを解明

T. Miyadera et al., *Nano Lett.* 15, 5630-5634 (2015).

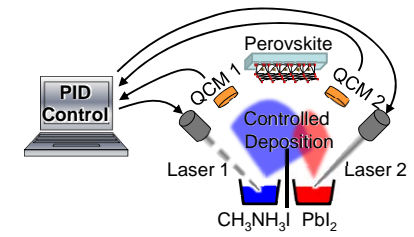
## SPring-8長期利用課題(真空蒸着プロセスのリアルタイム観察)



BL46XUにレーザー蒸着チャンパーを持ち込み、成膜過程をリアルタイム観察



### レーザー蒸着システム



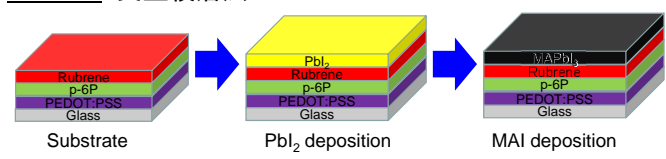
808 nm 半導体 CWレーザー  
Power ~ 30 W

有機鉛ペロブスカイトを制御性良く真空蒸着することに成功。共蒸着/交互積層の両方に対応可能。ハッチ外にPCを設置して遠隔操作で成膜制御を行うことが可能。

T. Miyadera et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2016, 8, pp 26013-26018.

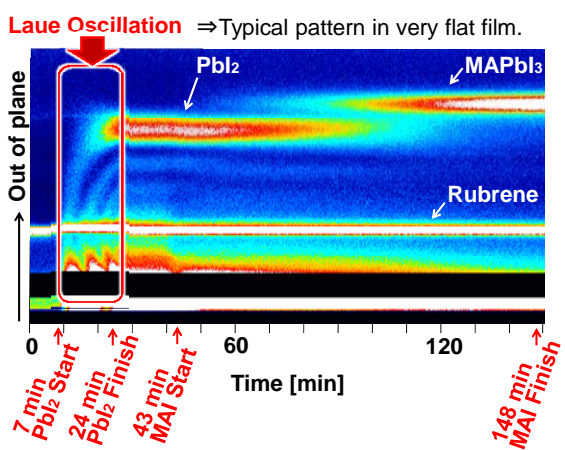
## リアルタイム解析

### プロセス: 交互積層法



### 実験条件

Beamline: Spring-8 BL46XU Exposure: 1 s for each frame  
X-ray:  $\lambda = 1 \text{ \AA}$  Substrate temperature: R. T.  
Incident angle: 0.5° Deposition rate: 0.1  $\text{\AA}/s$  ( $PbI_2$ )  
Detector: PILATUS 300K 0.05  $\text{\AA}/s$  (MAI)

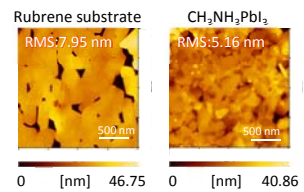


## 配向制御とモルフォロジー

### 表面平坦性

- 表面平坦性が高く、c-軸配向した $PbI_2$  薄膜
- Laue振動が観察された。
- 生成したペロブスカイト薄膜も[1 1 0] 配向

強く[1 1 0]配向したペロブスカイトが得られた理由は高結晶性基板を用いている事と、成長レートを遅く制御していることに起因すると思われる。



## まとめと今後の展望

- 有機鉛ペロブスカイトのレーザー蒸着過程(交互積層法)をリアルタイムGIXD観察
- $PbI_2$ から $CH_3NH_3PbI_3$ が形成されていく様子をとらえることに成功。
- 強く[1 1 0]配向したペロブスカイト結晶が形成された。

### 今後の展望

様々な材料および条件でのペロブスカイト結晶成長の解析を行う。加熱機構を増設し、温度をパラメータとした実験を行う。真空プロセス/溶液プロセスの両面で当該研究を推進。

## 謝辞

本研究はSpring-8長期利用課題(2017A0136~2018B0136)に採択されて推進した。また、本研究を推進するにあたり科研費の助成を受けた。関係各位に感謝する。