

ルブレン単結晶上の有機鉛ペロブスカイト結晶成長

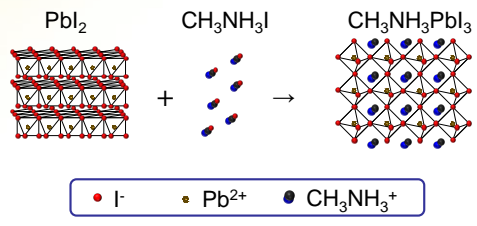
阿内悠人^{1,2}・宮寺哲彦¹・小金澤智之³・近松真之¹・吉田郵司¹・矢口裕之²

- 産業技術総合研究所 太陽光発電研究センター 有機系薄膜チーム
 - 埼玉大学 大学院理工学研究科 数理電子情報系専攻
 - 高輝度光科学研究センター(JASRI) 大型放射光施設SPring-8
- E-mail : sansouken-auchi@aist.go.jp

研究背景と目的

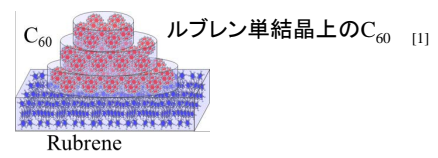
ペロブスカイト太陽電池は変換効率の向上が著しいことから研究が盛んに行われている。有機鉛ペロブスカイトの結晶成長を制御することは基礎研究およびデバイス応用の両観点から重要な研究課題である。
本研究では単結晶有機半導体上へ有機鉛ペロブスカイト $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ をヘテロエピタキシャル成長させることを試みた。

有機鉛ペロブスカイト



ヘテロエピタキシャル成長

結晶基板の表面規則性に沿って基板とは異なる材料を結晶成長させる手法

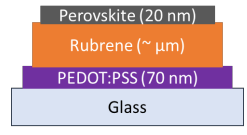


実験

1. 試料作製手順

- 気層成長法によりルブレン単結晶を作製
- PEDOT:PSSを塗布したガラス基板上にルブレン単結晶を静置
- 基板を真空チャンバー内に搬送し、IRレーザー蒸着法[2]により $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ を共蒸着

試料構造

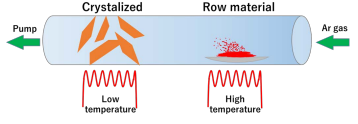


2. 評価方法

- 原子間力顕微鏡 (AFM: Atomic Force Microscope) → $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ の表面モルフォロジーを評価
- 斜入射X線回折 (GIXD: Grazing Incident X-ray Diffraction) Φスキャン測定
試料を360°回転させながら回折X線を2次元検出器で検出 → 3次元逆格子マッピングへ変換

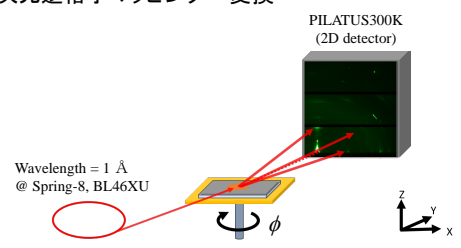
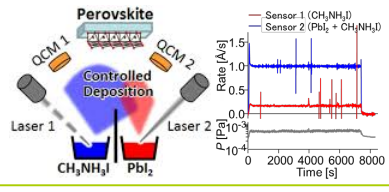
ルブレン(C₄₂H₂₈)

有機半導体中で最もホール移動度が高い



IRレーザー蒸着法[2]

課題であった $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ のガス化を抑制 → 成長速度の制御を実現

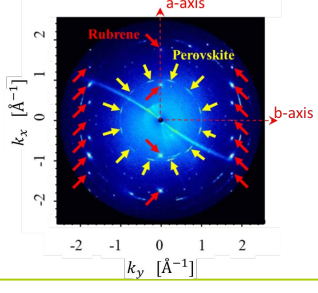


結果と考察

・面内逆格子マッピング

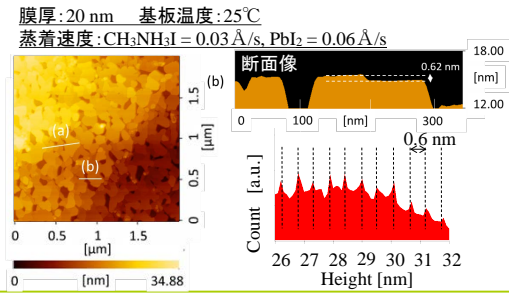
特定の方向に $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ の回折が見られた

ルブレン単結晶上において $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ がエピタキシャル成長している

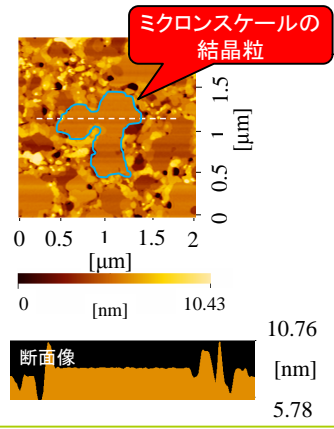


・表面モルフォロジー

- $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ の格子定数に相当するステップを確認した
- 膜厚のヒストグラムから0.6 nm毎に山になっており層状に成長している
- ミクロンスケールで平坦性の高い $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 結晶粒を観察した

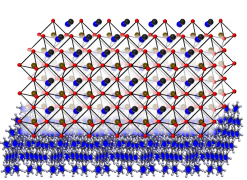


膜厚: 20 nm 基板温度: 25°C
蒸着速度: $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I} = 0.9 \text{ \AA/s}$, $\text{PbI}_2 = 1.3 \text{ \AA/s}$



結論

- ルブレン単結晶上の有機鉛ペロブスカイト結晶のエピタキシャル成長を確認した
- ルブレン単結晶上でミクロンスケールの結晶粒で平坦性の高い有機鉛ペロブスカイト結晶成長を観察した



参考文献

- H. Mitsuta, T. Miyadera et al., Cryst. Growth Des., 17, 9, 4622-4627 (2017).
- T. Miyadera et al., ACS Appl. Mater. Interfaces, 8, 39, 26013-26018 (2016).

謝辞

この研究は科学研究費補助金(16H05978)及びSPring-8(2017A0136)の支援を受けて行いました。