第76回応用物理学会秋季学術講演会 講演予稿集 (2015 名古屋国際会議場)

$CH_3NH_3PbI_3/CH_3NH_3PbBr_3$ ヘテロ積層真空蒸着膜の自発的混晶化

Spontaneous alloying of $CH_3NH_3PbI_3$ /$CH_3NH_3PbBr_3$ hetero-layered thin films fabricated by vacuum deposition

○佐野 惇郎[1]、中村 唯我[1]、松下 智紀[1]、近藤 高志[1,2]

(1. 東大工、2. 東大先端研)

○J. Sano[1], Y. Nakamura[1], T. Matsushita[1], T. Kondo[1, 2]

([1] School of Engineering, [2] RCAST, University of Tokyo)

E-mail: sano@castle.t.u-tokyo.ac.jp

この数年の間にペロブスカイト太陽電池のエネルギー変換効率は飛躍的に上昇している。我々は真空蒸着法を用いた高品質なペロブスカイト $CH_3NH_3PbX_3$ ($MAPbX_3$) (X:ハロゲン) 薄膜作製の研究を行っている。$MAPbBr_3$ 薄膜と $MAPbI_3$ 薄膜を真空蒸着によって順次、積層したところ、それらが自発的に混晶化し単一層になっていることを初めて見出したので報告する。

試料は以下のように作製した。ITO 付ガラス基板上に $PbBr_2$ と MABr を蒸着源として $MAPbBr_3$ 薄膜を蒸着し、さらにその上に PbI_2 と MAI を蒸着源として $MAPbI_3$ 薄膜を蒸着した。蒸着時の基板は水冷し、基板温度 21°C で一定に保持した。$MAPbBr_3$ 薄膜と $MAPbI_3$ 薄膜の目標膜厚がそれぞれ 120 nm と 100 nm になる試料（試料 6 : 5）と 800 nm と 100 nm になる試料（試料 8 : 1）の 2 種類を作製した。

これらの薄膜試料の XRD $2\theta/\omega$パターンを Fig. 1 に示す。回折ピークの面指数はいずれも立方晶の回折面である。28°–31°の範囲を見ると、立方晶 $MAPbBr_3$ の(200)ピークと正方晶 $MAPbI_3$ の(220)ピークに分離することなく、その間に単一の回折ピークが現れている。吸収スペクトルを Fig. 2 に示す。吸収端での立ち上がりが確認できるのはいずれの試料でも 1 箇所のみで、そのエネルギーは $MAPbI_3$ と $MAPbBr_3$ の間にある。これらは、薄膜全体が単一の $MAPb(I_{1-x}Br_x)_3$ 混晶層となっていることを示している。溶液法による $MAPb(I_{1-x}Br_x)_3$ 混晶についての報告[1]を参考に、$MAPb(I_{1-x}Br_x)_3$ 蒸着膜の組成比 x を決定した。XRD の(200)ピーク位置からは、試料 6 : 5 が $x = 0.37$, 試料 8 : 1 が $x = 0.82$、吸収端エネルギーからはそれぞれ $x = 0.39$, $x = 0.91$ となった。これらは、製膜時の $MAPbBr_3$ 薄膜と $MAPbI_3$ 薄膜の目標膜厚比ともほぼ一致している。

ヘテロ積層膜が室温において自発的に混晶化する現象は極めて特異で、そのメカニズムを解明する必要がある。また、この現象の活用法や混晶化を抑制する手段についても検討したい。

本研究の一部は、JST-ALCA、科研費の支援を得て行われた。

[1] J. H. Noh, *et al.*, Nano Lett. **13,** 1764–1769 (2013).

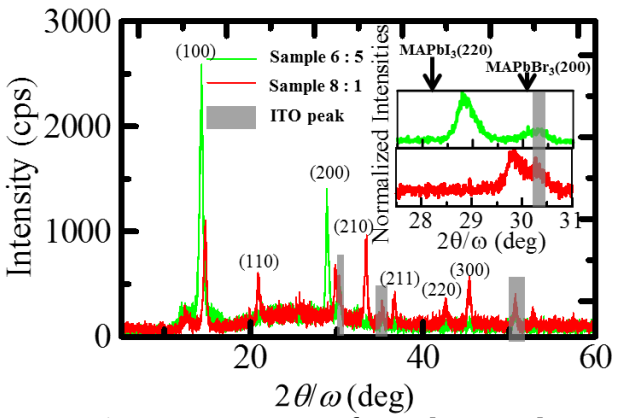

Fig. 1 XRD patterns of $MAPbI_3/MAPbBr_3$ thin films.

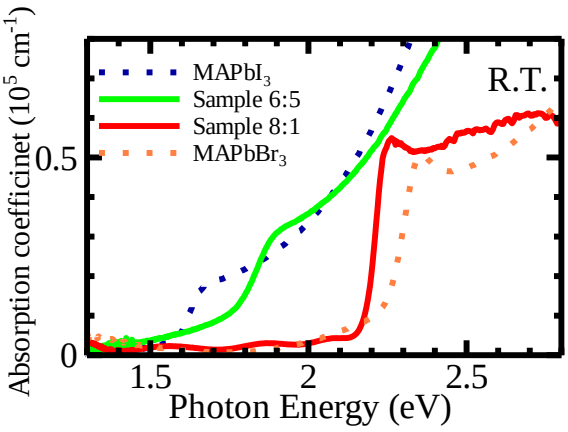

Fig. 2 Absorption spectrta of $MAPbI_3/MAPbBr_3$ thin films.

© 2015年 応用物理学会