有機無機ハイブリッド積層膜のコンビナトリアル分子層エピタキシーシステムとハライドペロブスカイト材料開発への応用

A design of the combinatorial molecular layer epitaxy system and its application to the fabrication of halide perovskite films

◦川嶋 一裕[1]、岡本 裕二[2]、豊蔵 信夫[1] 、高橋 竜太[3]、Lippmaa Mikk[3]、
鈴木 義和[2]、伊高 健治[4]、松木 伸行[5]、鯉沼 秀臣[1]
(1.東大新領域、2.筑波大、3.東大物性研、4.弘前大、5.神奈川大)

◦Kazuhiro Kawashima[1], Yuji Okamoto[2], Nobuo Toyokura[1], Ryota Takahashi[3],Lippmaa Mikk[3],
Yoshikazu Suzuki[2], Kenji Itaka[4], Nobuyuki Matsuki[5], Hideomi Koinuma[1]
(1. Univ. of Tokyo Graduate school of frontier sciences, 2. Tsukuba Univ.
3. Univ. of Tokyo ISSP, 4. Hirosaki Univ., 5. Kanagawa Univ.)
E-mail: k.kawashima@ams.k.u-tokyo.ac.jp

我々は既に高温超電導化合物を始めとするペロブスカイト酸化物を単位格子レベルで制御する分子線エピタキシー装置を開発した[1]。この知見を赤外（IR）レーザーによる有機薄膜用装置に拡張するとともに、堆積位置と膜成長速度を制御する可動マスクと組み合わせたコンビナトリアルナノ材料研究システム[2]は、ベンチャー展開[3]され海外にも普及している。多成分系である事や結晶安定化など、多くの最適化因子を有するペロブスカイト太陽電池開発用に設計、試作した装置の概要と初期的研究成果を報告する。

本研究では、上記の新規技術の確立を目指し、IR レーザー堆積による CH_3NH_3I と PbI_2 の交互積層によるペロブスカイトの製膜を行った。まず、精密なストイキオメトリーと均一性を有する $CH_3NH_3PbI_3$ 薄膜を実現するため、二つの材料をそれぞれ単分子層レベル（PbI_2:7 Å, CH_3NH_3I:9 Å）で制御された積層構造を形成した。製膜プロセスは、蒸着源の選択、レーザーパワーの調整・on/off を PC からシーケンス制御して行った（図 1）。更に、可動マスクを用いたコンビナトリアル技術（図２）を利用し、ペロブスカイト化合物の組成最適化に取り組んだ。コンビナトリアル技術によってサンプル内における堆積位置と組成を一義的に決定する事ができ、一つのサンプルから系統的なデータ収集と迅速な組成の最適化が可能となる。

[1]M.Kawasaki, et al., Science **266** (1994)1540
[2]鯉沼、伊高、固体物理 **42** (2007) 49
[3]http://www.comet-nht.com

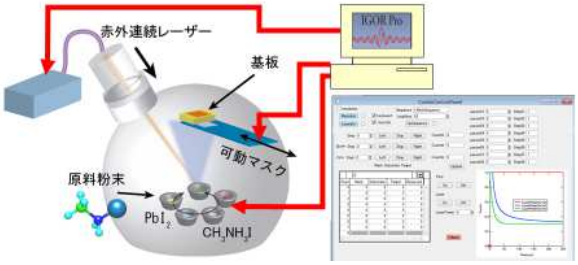

図 1　IR-LD、ターゲット選択および可動マスクのシーケンス制御概念図

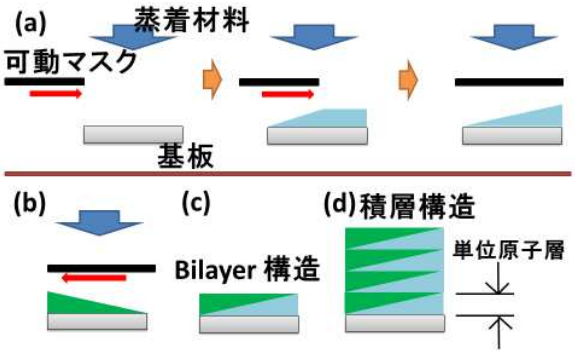

図 2　コンビナトリアル製膜技術の概要 (a)可動マスクを用いて膜厚傾斜サンプルを作成の様子 (b)逆のエッジを利用して反対方向の膜厚傾斜。(a)と(b)を組み合わせることで Bilayer(c)や積層構造(d)といった組成傾斜を作成可能。

© 2016年 応用物理学会