$CH_3NH_3PbBr_3$ 単結晶基板上 $CH_3NH_3Pb(BrCl)_3$ 混晶 ヘテロエピタキシャル膜の形成

Formation of Heteroepitaxial Film of $CH_3NH_3Pb(Br_{1-x}Cl_x)_3$ on $CH_3NH_3PbBr_3$ Single Crystal Substrate

東大工 [1]，東大先端研 [2]　○(M2) 木村 浩平 [1]，松下 智紀 [1,2]，近藤 高志 [1,2]

School of Eng.[1], RCAST[2], Univ. of Tokyo ○Kohei Kimura[1], Tomonori Matsushita[1,2], Takashi Kondo[1,2]

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

ハロゲン化鉛ペロブスカイト型半導体は、太陽電池や発光デバイス、光検出器などに主にその多結晶薄膜が他の材料と組み合わせて利用されている。将来的にはハロゲン化鉛ペロブスカイト物質同士のヘテロ構造や単結晶を用いたデバイスが必要となると考えられ、その基盤技術としてヘテロエピタキシーが不可欠である。我々はこれまで、$CH_3NH_3PbBr_3$ 単結晶基板上 CH_3NH_3I/ PbI_2 共蒸着による $CH_3NH_3Pb(Br_{1-x}I_x)_3$ エピタキシャル薄膜の形成と、そのヨウ素組成減少について報告した[1]。これらは、ハロゲン化物イオン空孔を介した Br^- と I^- の相互拡散が原因である。一方、I^- と Cl^- では $CH_3NH_3PbBr_3$ への取り込みに差があるとされている[2]。今回は、$CH_3NH_3PbBr_3$ 単結晶基板上 $CH_3NH_3Cl/PbCl_2$ 共蒸着によるエピタキシャル薄膜作製について報告する。

$CH_3NH_3PbBr_3$ (001)単結晶基板を 21°C に水冷し、CH_3NH_3Cl 圧力を 0.005 Pa、$PbCl_2$ 製膜レートを 0.2 Å/s に保って 8100 秒間，真空蒸着装置を用いて照射した。図 1 に非対称点(024)近傍の X 線回折逆格子マップ（製膜 2 日後）を示す。単結晶基板の急峻な回折ピークの高角に薄膜からの回折パターンが観察され、$CH_3NH_3Pb(Br_{1-x}Cl_x)_3$ が(001)配向していることがわかる。図 2 に基板と薄膜それぞれの(024)回折点のϕスキャンの結果を示す。独立した 4 つの回折ピークのみが共通のϕに観察されることから、$CH_3NH_3Pb(Br_{1-x}Cl_x)_3$ 薄膜はエピタキシャルに形成しているといえる。形成された $CH_3NH_3Pb(Br_{1-x}Cl_x)_3$ 混晶薄膜は完全緩和しており，その塩素組成 x には 0−30%の幅がある。CH_3NH_3I/PbI_2 共蒸着の場合には単一組成の $CH_3NH_3Pb(Br_{0.95}I_{0.05})_3$ スードモルフィック薄膜が形成しており[1]、今回の $CH_3NH_3Pb(Br_{1-x}Cl_x)_3$ エピタキシャル薄膜はこれと大きく様相が異なっている。

[1] 木村浩平，松下智紀，近藤高志: 2018 年春季第 65 回応用物理学会春季学術講演会,18p-G202-2.

[2] Norman Pellet, Joël Teuscher, Joachim Maier, and Michael Grätzel, *Chem. Mater.* **27,** 2181 (2015).

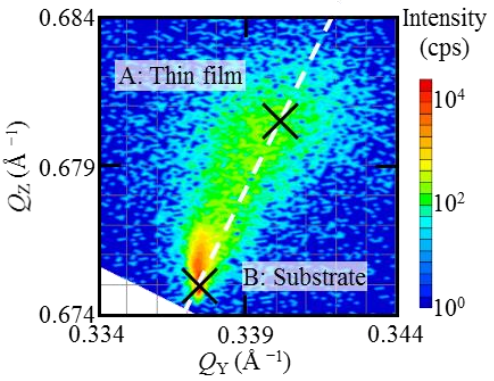

Fig.1 XRD reciprocal space map of a formed thin film on a $MAPbBr_3$ single crystal substrate around the (024) diffraction. White broken line is perpendicular to (024) planes for cubic structure.

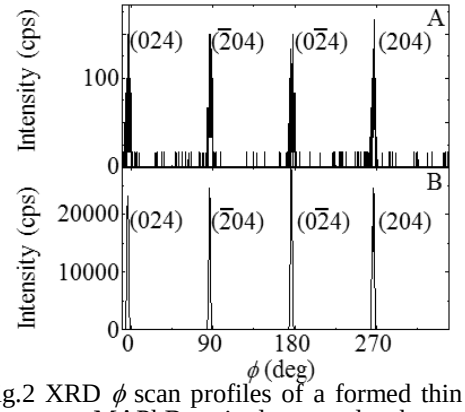

Fig.2 XRD ϕ scan profiles of a formed thin film on a $MAPbBr_3$ single crystal substrate for {024} diffractions from the substrate (bottom) and from the formed thin film (top).