

三ヨウ化メチルアンモニウム鉛単結晶とドナー分子との界面電子状態および不純物の効果

Impacts of the Presence of Impurities on the Interface Electronic States

between the Single Crystal $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ and Organic Donor Molecules東理大理工¹, 高エネ研² ○中山 泰生¹, 岩下 政揮¹, 山中 宗一郎¹, 鶴田 諒平¹, 間瀬 一彦²Tokyo Univ. Sci.¹, KEK²,○Yasuo Nakayama¹, Masaki Iwashita¹, Soichiro Yamanaka¹, Ryohei Tsuruta¹, Kazuhiko Mase²

E-mail: nkym@rs.tus.ac.jp

ペロブスカイト太陽電池の動作機構を考慮する上で、光吸収による正負キャリアが主として生成するペロブスカイト半導体材料と、それらの電荷を電極へと橋渡しする電荷輸送材料との接合部分の電子構造を理解することは重要である。本研究では、ペロブスカイト半導体としては最も基本的な材料である三ヨウ化メチルアンモニウム鉛(MAPI)と、ペロブスカイト太陽電池によく用いられる正孔輸送分子であるスピロビフルオレン誘導体(spiro-OMeTAD)を対象とし、MAPI 単結晶表面上に spiro-OMeTAD を真空蒸着した「清浄界面」の電子構造および界面への不純物の介在による電子状態の変化を、X 線および紫外光電子分光法(XPS, UPS)により詳細に検討した[1]。

MAPI 単結晶表面は既報[2]と同様の手法で調製し、試料表面の清浄性は O1s XPS 信号の有無で判定した[2,3]。その上に、spiro-OMeTAD を概ね 0.4 nm/min.以下の蒸着速度にて段階的に真空蒸着し、試料を作製した。XPS および UPS 測定は KEK-PF, BL-13B において実施した。試料の調製および XPS, UPS 測定は全て室温で行った。

Fig. 1 に、MAPI 単結晶清浄表面上への spiro-OMeTAD の積層に伴う $\text{Pb}4f_{7/2}$ XPS の変化を示す。 Pb^0 強度の増加は spiro-OMeTAD から MAPI への電子供与を示唆しており、真空準位の低下も吸着種側が正に帯電していることと矛盾しない。また、 $\text{Pb}4f$ ピーク位置は spiro-OMeTAD の吸着に伴い高結合エネルギー側へ 0.1 eV 程度移動しているが、同様のピークシフトは I 由来の内殻ピークでも確認されたことから、spiro-OMeTAD との接合形成に伴い MAPI に下向きバンドの曲がり誘起されたと考えられる。一方、表面に O1s 信号が確認された MAPI 単結晶表面上では、spiro-OMeTAD の積層に伴う Pb^0 強度の増大は見られなかったことから、不純物の存在によりドナー分子から MAPI への電子移動が阻害されることが明らかになった。

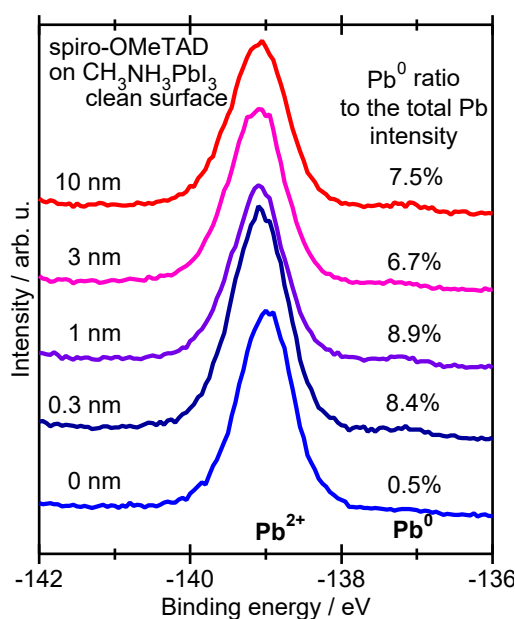


Fig. 1: $\text{Pb}4f_{7/2}$ XPS spectra of the MAPI single crystal clean surface and the spiro-OMeTAD overlayers.

[1] M. Iwashita, et al., *Appl. Phys. Lett.* **116** (2020) 223902 [[Open Access](#)]. [2] S. Yamanaka, et al., *Appl. Phys. Express*, **12** (2019) 051009. [3] S. Yamanaka, et al., *J. Appl. Phys.* **123** (2018) 165501.