

# 層状ペロブスカイト化合物の結晶成長制御による垂直配向化の検討

## Vertical alignment of layered perovskite compounds by controlling crystal growth

上智大理工<sup>1</sup> ○(B4)秋吉美里<sup>1</sup>, 藤田正博<sup>1</sup>, 竹岡裕子<sup>1</sup>, 陸川政弘<sup>1</sup>

Sophia Univ.<sup>1</sup>, <sup>○</sup>Misato Akiyoshi<sup>1</sup>, Masahiro Fujita<sup>1</sup>, Yuko Takeoka<sup>1</sup>, Masahiro Rikukawa<sup>1</sup>

E-mail: y-tabuch@sophia.ac.jp

【緒言】アルキルアミンとヨウ化鉛からなる有機-無機層状ペロブスカイト化合物は優れた光学特性と高い安定性を示すため、太陽電池への応用が期待される。従来法である Spin-coat 法で得られた薄膜では、ヨウ化鉛八面体からなる無機半導体層が基板に対し水平に配向するため、アルキルアミン絶縁層による電荷輸送の妨げが問題である。これまでに HOOC(CH<sub>2</sub>)<sub>6</sub>NH<sub>3</sub>I (7AHAI)をアミンに用いることで無機半導体層の垂直配向性が高まることを報告している。本研究では、さらに垂直配向性を高めることを目的として、Bar-coat 法を用い、溶媒に高沸点の添加剤を加えて結晶成長の制御を検討した。

【実験】7AHAI と PbI<sub>2</sub> を物質量比 2:1 で *N,N*-dimethylformamide に溶解した。この溶液に dimethylsulfoxide (DMSO) : PbI<sub>2</sub> = 0.6 : 1 の物質量比になるよう、DMSO を添加した後、室温で攪拌し、前駆体溶液を調製した。Spin-coater または Bar-coater を用いて、親水化処理したガラス基板に前駆体溶液を塗布後、110°C でアニールし、[HOOC(CH<sub>2</sub>)<sub>6</sub>NH<sub>3</sub>]<sub>2</sub>PbI<sub>4</sub> (monolayer) 薄膜を作製した。薄膜の結晶構造を XRD 測定より、結晶形態を断面 SEM 観察により評価した。

【結果と考察】 Spin-coat 法(a)と Bar-coat 法(b)により作製した各 monolayer 薄膜の *In-plane* XRD 測定の結果を図 1 に示す。Spin-coat 法で作製した薄膜では、14.4°に回折が観察された。Bar-coat 法では 4.4°と 14.4°の回折が積分強度比 1.24 : 1 で観察された。4.4°の回折は 7AHAI 層と交互に積層したヨウ化鉛八面体層間の距離 19.9 Å に相当し、垂直配向した構造に由来する。14.4°のピークは八面体間距離 6.2 Å に相当し、水平配向した構造に由来するため、Bar-coat 法で作製した薄膜の方が結晶の垂直配向性が高いことが示唆された。図2の断面 SEM 画像から、(a)では水平な、(b)では連続的な垂直配向の結晶構造が観察され、XRD 測定の結果との相関が確認された。添加剤の効果を調べるため、DMSO を添加せず、同様の手法で薄膜を作製した結果、Spin-coat 法、Bar-coat 法共に 14.4°の回折が観察され、4.4°の回折は観察されなかった。SEM の結果、基板に平行な結晶の積層が観察され、垂直配向化への添加剤の効果が示唆された。Bar-coat 法では膜厚 0.9 ~ 2 μm において、垂直配向した結晶構造が観察された。

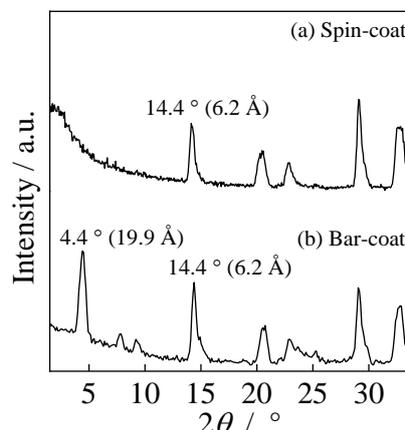


Figure 1. *In-plane* XRD patterns of monolayer films prepared by (a) spin-coat and (b) bar-coat methods.

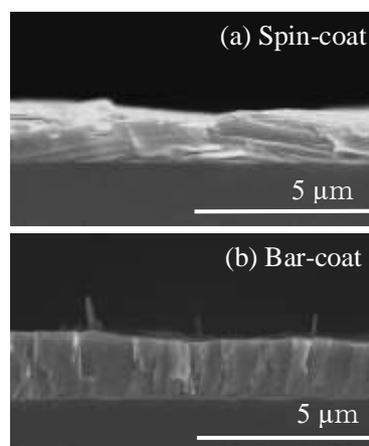


Figure 2. Cross-sectional SEM images of monolayer films prepared by (a) spin-coat and (b) bar-coat methods.