液中レーザプロセッシングによる
低次元ハイブリッドペロブスカイト半導体のナノ構造制御

名古屋工業大学　物理工学科
教授　濱中　泰
（2023 年度 一般研究開発助成 AF-2023210-B2）

キーワード：有機無機ハイブリッドペロブスカイト，低次元構造，レーザプロセッシング

１．研究の目的と背景

有機–無機ハイブリッドペロブスカイト半導体は，2009 年に 3.8%の電力変換効率を示すペロブスカイト太陽電池が報告されたことを契機として，大きな注目を集めるようになった [1]．その後，効率は飛躍的に向上し，2025 年には 26%を越えた [2]．ペロブスカイト半導体は溶液プロセスにより低コストに作製できる点でも優れており，現在，最も有望な太陽電池材料とされている [3]．このような優れた光起電力特性に加えて，ペロブスカイト半導体は高効率でシャープな発光等の優れた光学特性を示すため，新規フォトニクス応用の観点からも注目されている [4]．

メチルアンモニウム鉛ハライド($MAPbX_3$，ここで MA = CH_3NH_3，X = Cl，Br，I)は，鉛ハライド八面体が頂点を共有して形成する三次元(3D)ネットワーク構造を有し，3D ペロブスカイトと呼ばれる（図 1）．一方，構造の次元性が低い多様なハイブリッドペロブスカイトも開発されてきた [5]．二次元(2D)層状ペロブスカイトは，八面体の単層シートが MA よりもかさ高い有機カチオンによって隔てられた構造をとる [6]．無機層と有機層は交互に積層している（図 2）．無機層内への強いキャリア閉じ込め効果により，2D ペロブスカイトは量子井戸の性質を示す．そのため，2D ペロブスカイトは，ハライドペロブスカイトが太陽電池材料として注目されるはるか以前から，低次元励起子系の物理学の分野で盛んに研究が行われてきた [7-9]．

近年，有機層にキラルな構造のアミン分子を用いた新規な光機能を有する 2D ハイブリッドペロブスカイトが報告されている．このようなキラル 2D ペロブスカイトは，強い円二色性 [10]，一方に円偏光した発光 [11]，一方の円偏光に応答する光起電力効果 [12]を示す．

単層の無機層を有する 2D ペロブスカイトに対して，有機カチオンによって隔てられた 2 層以上の厚さの鉛ハライド八面体の無機層から成るペロブスカイトは，準 2D(quasi 2D)

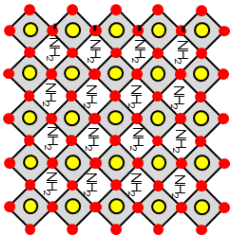


図１　3D ペロブスカイトの構造

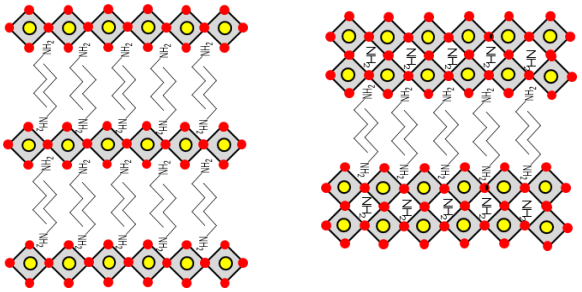


図 2　2D ペロブスカイト（左）と準 2D ペロブスカイト（右）の構造

ペロブスカイトと呼ばれる（図 2）．これは 2D ペロブスカイトと 3D ペロブスカイトの中間的な構造であり，量子閉じ込め効果の強さが無機層の厚さに依存して変化する．準 2D ペロブスカイトの構造を作り上げるには，無機層の構成部材である MA のような小さい有機カチオンと，有機層となる大きい有機カチオンの 2 種の有機カチオンが必要である．

2D および準 2D 鉛ハライドペロブスカイトは，溶液プロセス [14]，真空蒸着 [15]，スピンコート [16]，Langmuir–Blodgett 法 [17]など，さまざまな方法で合成することができる．著者は，これらの方法とは異なり，液中でのレーザアブレーション(Liquid Phase Laser Ablation，LPLA)法を用いて，様々な層間距離の 2D ペロブスカイトをワンステップで合成できることを 2023 年に報告した [18]．本研究では，同様の手法を，鉛ハライド層の層厚を制御した準 2D ペロブスカイトの合成に適用することを目指した．また，従来の鉛ハライド系のペロブスカイトでは，鉛の有毒性が社会実装上の課題であった．そこで，LPLA 法に基づく鉛フリーの 2D ペロブスカイトの作製法の開発も本研究の目標である．

本研究では，二種のアルキルアミンを加えた溶媒中において，3D ペロブスカイトに対してレーザアブレーションをおこなうと，準 2D 臭化鉛ペロブスカイトをワンステップで合成できることを示した．本手法により，臭化鉛八面体の二層シートとアルキルアミンから成る周期多層構造の準 2D ペロブスカイトが形成された．また，本手法は鉛フリー系にも適用でき，2D 構造の臭化スズペロブスカイトを作製することに成功した．スズ系ペロブスカイトにおいて大きな課題とされる，大気中で容易にスズが Sn^{2+}から Sn^{4+}へ酸化される現象($2MASnBr_3 + O_2 \rightarrow MA_2SnBr_6 + SnO_2$)が，2D 系では抑制されることも見出した．

２．実験方法

２・１　液中レーザアブレーション

メチルアンモニウム臭化鉛($MAPbBr_3$)またはメチルアンモニウム臭化スズ($MASnBr_3$)をアブレーションターゲットに用いて，レーザアブレーションをトルエン中でおこなった．板状(5 mm × 5 mm × 2 mm)の単結晶 $MAPbBr_3$ ターゲットを，逆温度結晶化法によって作製した [19]．$MASnBr_3$ は，MABr と $SnBr_2$ のジメチルホルムアミド溶液からエバポレータを使用して溶媒を蒸発させて得た．粉末状の $MASnBr_3$ を圧縮成形して直径 7mm の円柱形ペレットを作製し，これをターゲットとして用いた．それぞれのターゲットは，モレキュラーシーブを使って脱水したトルエン(10 mL)を入れたガラス容器の底に配置した．レーザ光源には，Q スイッチ Nd:YAG レーザー(Quanta-Ray GCR130 または LOTIS TII LS2131M)を用いた．レーザの仕様は，波長 532 nm，パルス幅約 7 ns，繰返し周波数 10 Hz，パルスエネルギー約 1.7 mJ である．焦点距離 150 mm の平凸レンズを用いて鉛直上方からレーザ光をトルエン中のターゲットに集光した．ターゲットとトルエンの入ったガラス容器を電動 XY ステージ(SIGMAKOKI HPS80-20XY)に乗せて，水平面内で移動させ，ターゲットの局所的な損耗を防いだ．2 時間アブレーションを実施した後，ガラス容器の内容物を遠心分離にかけて，生成物を沈殿させて回収した．

レーザアブレーションを実施する際には，ターゲットを入れたトルエン中にアルキルアミンを添加した．用いたアミンは，第一級アミン(RNH_2，$R = C_nH_{2n+1}$)である．具体的には，ブチルアミン(BA, n = 4)およびオクチルアミン(OCA, n = 8)を用いた．さらに，MA(n = 1)を加える目的で，MABr のジメチルホルムアミド溶液を用いた．

２・２　生成物の分析法

アブレーション生成物の X 線回折(XRD)パターンを，粉末 X 線回折装置(Rigaku Smart Lab SE)により測定した．線源には Cu-Kα 線を使用した．吸収スペクトルは，積分球を備えた分光光度計(JASCO V570)を用いて測定した．フォトルミネッセンススペクトルは，分光蛍光光度計(JASCO FP-8350)を用いて測定した．

３．実験結果と考察

３・１　アミン無添加および一種アミン添加でのレーザアブレーションの結果

図 3 に，アブレーションターゲットとして合成した $MAPbBr_3$ と $MASnBr_3$ の粉末 XRD パターンおよびアミンを加えずに各ターゲットから得られた LPLA 生成物の XRD パターンを示す．図 3(a)と(d)に示すように，二種のターゲットはいずれも立方晶ペロブスカイトに帰属される回折パターンを示した．また，$MAPbBr_3$ から得られた LPLA 生成物（図 3(b)）も同じく立方晶 $MAPbBr_3$ と同定できた．一方，$MASnBr_3$ から得られた LPLA 生成物（図 3(e)）には，立方晶 $MASnBr_3$ の回折ピーク（図 3(f)）の他に，強いピークが多数観測された．これらのピークの位置は，空孔秩序型ダブルペロブスカイト MA_2SnBr_6 の報告値とよく一致した [20]．そのため，$MASnBr_3$ 中の Sn^{2+} が Sn^{4+}へと酸化され，Sn 空孔が生成して MA_2SnBr_6 が形成されたと考えられる [21]．このような Sn 系ペロブスカイトの大気中での急速な酸化はよく知られている．

図 4(a)，(b)に，それぞれ $MAPbBr_3$ と $MASnBr_3$ ターゲットからのアミン無添加で実施した LPLA で得られた生成物の吸収スペクトルを示す．2.3 eV および 2.2 eV 付近のショルダーピークは，それぞれ立方晶 $MAPbBr_3$ および立方晶 $MASnBr_3$ の励起子吸収に対応している．図 4(c)

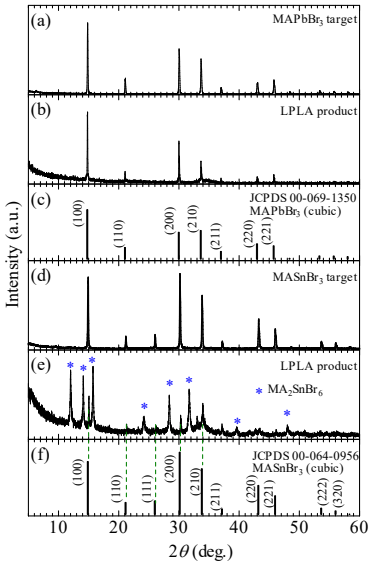


図 3　$MAPbBr_3$ と $MASnBr_3$ およびそのアブレーション生成物の XRD パターン

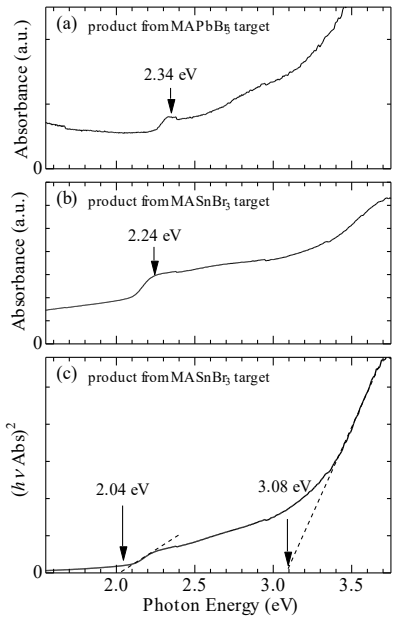


図 4　$MAPbBr_3$ と $MASnBr_3$ のアブレーション生成物の吸収スペクトル

には，図 4(b)のスペクトルを，縦軸を変換する Tauc プロット法で表示した結果を示す．2 eV と 3 eV 付近にそれぞれ階段状の構造が現れた．直線部を外挿して見積もったバンドギャップエネルギーは，それぞれ 2.04 eV と 3.08 eV であった．これらの値は，それぞれ立方晶 $MASnBr_3$ (2.1–2.3 eV)[22]と MA_2SnBr_6 (2.94 eV)[20]に対して報告されている値とよく一致していた．LPLA に伴う MA_2SnBr_6 の形成は，このように分光分析によっても確認された．この結果は，Sn 系ペロブスカイトの LPLA において酸化抑制が重要な課題であることを示している．

前述したように，2D や準 2D ペロブスカイトの形成には MA より長鎖のアルキルアミンが必要である．$MAPbBr_3$ に対して LPLA を行うと，アミンを添加しない場合にはターゲットと同じ 3D ペロブスカイトの $MAPbBr_3$ が形成された．図 5(a)と(c)に，それぞれ 1.23 mmol の BA または OCA を添加して $MAPbBr_3$ ターゲットに対して実施した LPLA から得られた生成物の XRD パターンを示す．回折パターンは，3D $MAPbBr_3$ のパターン（図 5(e)）とは明らかに異なっており，等間隔に規則的に並んだピーク列から構成されている．このようなピーク系列は，2D 層が周期的に積層した層状構造のペロブスカイトに特徴的である[16, 17]．OCA 添加の生成物には 2 系列のピークが観測されたが，BA 添加の場合には 1 系列である．ピークの間隔 $\Delta(2\theta)$は，BA 添加で約 6.5°，OCA 添加で約 4.2°，4.4°であった．

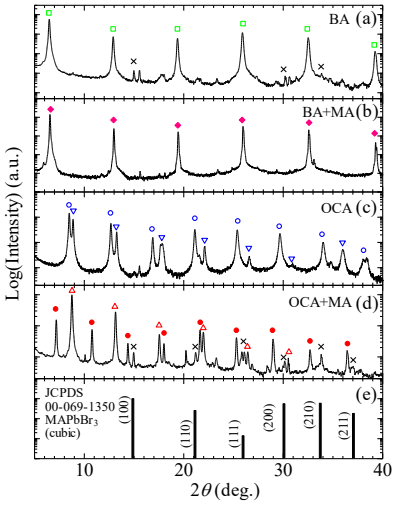


図 5　アミンを添加して実施した $MAPbBr_3$ からのアブレーション生成物の XRD パターン

構造周期（無機層の層間距離）d を見積もるため，各ピークの θ 値に対して，図 6(a)に示すように $\sin\theta$ を指数 m に対してプロットしたグラフを作成すると比例関係にあることが明らかである．Bragg の式を用いてフィッティングをした結果，層間距離は BA で 1.376 nm，OCA で 2.107 nm と 2.009 nm と算出された．より長鎖の OCA を添加した場合に大きな層間距離が得られた．$PbBr_6$ 八面体単層シートとアミン層が交互に積層した$(C_nH_{2n+1}NH_3)_2PbBr_4$ 型 2D ペロブスカイトの形成が示唆される．図 6(b)に，層間距離と直鎖アミン分子の炭素原子数 n との関係を示す．破線は先行研究において実験的に決定された層間距離を示している[16, 23]．本研究の LPLA 生成物の層間距離は，先行研究とよく一致しており，$PbBr_6$ 単層と BA または OCA から構成される 2D ペロブスカイトの形成が裏付けられた．

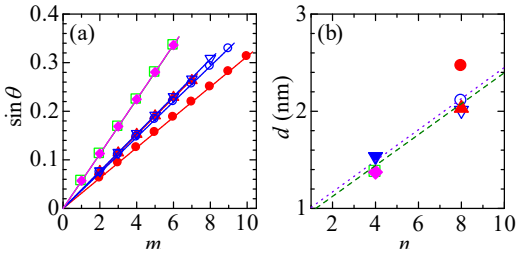


図 6　(a) XRD ピークの次数と回折角の関係（記号は図 5 中のピークに付した記号と対応）(b) 添加したアルキルアミンの炭素原子数と面間隔の関係（▼は $MASnBr_3$ ターゲット，BA 添加）

3・2　二種アミン添加でのレーザアブレーションの結果

準 2D 臭化物ペロブスカイトは，2D より厚さのある $PbBr_x$ 八面体シートと有機層で構成され，$PbBr_x$ 層内には MA が存在する．準 2D ペロブスカイトを LPLA で合成するため，$MAPbBr_3$ ターゲットに対して BA もしくは OCA だけでなく、さらに MA も同時に添加して実験を実施した．得られた生成物の XRD パターンを図 5(b)と(d)に示す．0.62 mmol の BA と 0.12 mmol の MA を同時添加した場合，図 5(b)に示すように XRD パターンは BA のみを添加した場合とよく一致しており，MA 存在下でも 2D ペロブスカイト構造が形成されたことがわかる．期待した準 2D ペロブスカイトに由来する回折ピークは観測できなかった．このとき $\Delta(2\theta)$値は約 6.5°であり，図 6(a)から算出した層間距離は 1.374 nm であった．

一方，0.62 mmol の OCA と 0.12 mmol の MA を同時添加した場合には，OCA だけを添加した場合とは異なる XRD パターンが得られた（図 5(d)）．観測された周期ピークのピーク間隔は，OCA 単独添加の場合とは異なっていた．OCA 単独添加で形成された 2D ペロブスカイトに類似する $\Delta(2\theta) \approx 4.4°$の系列に加え，$\Delta(2\theta) \approx 3.6°$の新たな系列が観測された．図 6(a)の解析により，これらに対応する層間距離は，それぞれ 2.032 nm，2.465 nm と見積もられた．図 6(b)のプロットから分かるように，2.032 nm は，$PbBr_6$ 八面体単層と OCA 有機層から成る 2D ペロブスカイトの層間距離によく一致している．一方，2.465 nm は，これよりも大きい．Takeoka らによれば，二層の $PbBr_x$ 八面体シートを持つ準2D臭化鉛ペロブスカイトの層間距離は，単層の 2D ペロブスカイトよりも約 0.5 nm 大きい

ことが報告されている[16]．したがって，2.465 nm の層間距離は，二層 $PbBr_x$ シートと OCA 層が交互に積層した準 2D ペロブスカイトが形成されていることを示している．図 5(d)の XRD パターンに示すように，OCA と MA を添加して LPLA を行った場合には，3D $MAPbBr_3$ ペロブスカイトも同時に生成した．

回折測定によって明らかとなったこのような構造は，分光学的手法によっても確認した．図 7 に，図 5 に XRD パターンを示した LPLA 生成物の吸収スペクトルとフォトルミネッセンススペクトルを示す．BA だけを添加（図 7(a)）および BA と MA を同時添加（図 7(b)）した場合の LPLA 生成物の両方で，吸収・発光スペクトルに 3.0～3.1 eV 付近に明瞭なピークが観測された．これらのピーク位置およびスペクトル形状は，さまざまな有機アミンを有機層とした 2D 臭化鉛ペロブスカイトについて報告されている結果とよく一致している[5, 9, 14, 16, 23]．また，2.3 eV 付近の 3D ペロブスカイトのスペクトルが見られないことは，XRD の結果と整合している．これに対して，OCA および MA を添加して得られた LPLA 生成物では，3D ペロブスカイトの存在を示す 2.3–2.4 eV 付近の発光・吸収ピークが観測された（図 7(c)，(d)）．さらに，OCA 単独添加でも，OCA と MA 同時添加でも，2D ペロブスカイトに由来する約 3.1 eV の吸収ピークが観測された．特筆すべきは，OCA と MA を同時添加して得られた生成物では，OCA 単独添加試料には見られなかった 2.6–2.9 eV 付近の複数の吸収・発光ピークが観測されたことである（図 7(d)）．2.87 eV の吸収ピークと 2.83 eV の発光ピークは，既報の値との一致から $PbBr_x$ 二層シートで構成される準 2D ペロブスカイトに帰属できる[24]．また，同様に，2.75 eV（吸収）と 2.71 eV（発光）のピークは，$PbBr_x$ 三層シートの準 2D ペロブスカイトに帰属できる[24]．一方，XRD 測定では，二層の準 2D ペロブスカイトの存在は確認されたものの，三層の準 2D ペロブスカイトの層間距離に対応する回折ピークは観測されなかった．このことは，三層のペロブスカイトが十分な積層数を持たず回折が弱いことを示唆している．以上の結果から，3D 臭化鉛ペロブスカイトの LPLA を長短 2 種類のアミンを同時に添加して実施すれば，準 2D 臭化鉛ペロブスカイトを合成可能であることが確認できた．

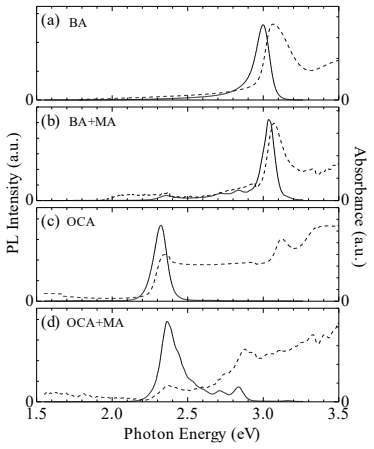


図 7　アミンを添加して実施した $MAPbBr_3$ からのアブレーション生成物のフォトルミネッセンススペクトル（実線）と吸収スペクトル（鎖線）

ここで，準 2D ペロブスカイトは有機層の材料として OCA を用いた場合には形成されたが，BA を用いた場合には形成されなかった．J. Zhang らは，準 2D ペロブスカイトの安定性が，アルキルアンモニウムカチオンの炭素鎖長に依存することを報告している[25]．彼らは，異なる鎖長を有する 8 種類の直鎖アルキルアンモニウムカチオンを含む準 2D ペロブスカイトを比較した．その結果，準 2D 構造は時間経過とともに徐々に 3D 構造へ転移するものの，アルキル基が長いほど再配列に対する耐性が高いことが示された．彼らは，長鎖アルキルアンモニウムカチオンが大きな立体障害効果をもつため，形成された準 2D ペロブスカイトの安定性が向上すると説明している．アルキルアミンの炭素鎖長に起因する同様の立体障害効果の強弱によって，本研究で OCA では準 2D ペロブスカイトが形成されたが，BA では形成されなかったことを理解できる．

3・3　二次元鉛フリーハイブリッドペロブスカイト

図 8(a) (b)に，$MASnBr_3$ ターゲットに対するアブレーション生成物の XRD パターンを示す．BA(1.18 mmol)を添加して実施して得られた生成物の XRD では，ほとんど全ての回折ピークが $\Delta(2\theta) \approx 5.9°$の間隔で並んでいる．$MAPbBr_3$ ターゲットに長鎖アルキルアミンを添加した場合と同様の，層状構造の 2D ペロブスカイトの形成が示唆される．このとき，立方晶 $MASnBr_3$ の回折ピーク（図 8c)）は観測されず，3D ペロブスカイトは得られていない．

BA 添加によって合成した生成物の層間距離 d を見積もるため，図 8(a)に示した周期的ピーク系列について，挿入図に示す sinθ と指数 m の関係を解析した．Bragg の式か

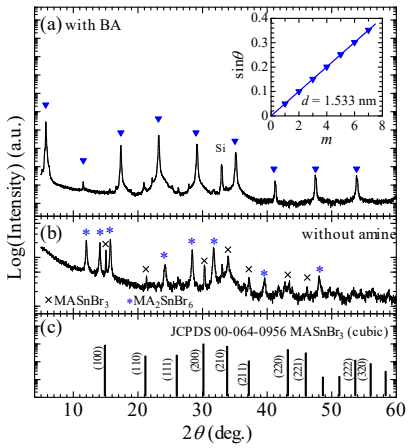


図 8　$MASnBr_3$ からのアブレーション生成物の XRD パターン (a)BA 添加 (b)アミン無添加

ら得られる線形関係（図 6(b)にプロット）を用いて，層間距離は 1.533 nm と算出された．この値は，$PbBr_6$ 単層と BA 層が交互に積層した 2D 臭化鉛ペロブスカイトについて報告されている 1.49 nm[23] や 1.44 nm[16]に近い．格子定数を比較すると，$MAPbBr_3$ は 0.593076 nm、$MASnBr_3$ は 0.59038 nm であり，鉛系とスズ系のペロブスカイトの単位格子体積はほとんど同じである [22]．このことから，1.533 nm の層間距離は，生成物が 2D 臭化スズペロブスカイトであることを示している [26]．

さらに重要なことに，BA 添加の LPLA 生成物の XRD パターンには MA_2SnBr_6 の回折ピークが見られなかった。前述のように，アミン無添加で得られるスズ系 3D ペロブスカイトの場合は，これらのピークが観測されスズの酸化が避けられないことが明らかであった．一方，本研究の観測結果は，スズ系 2D ペロブスカイトがスズ系 3D ペロブスカイトと比較して酸化耐性が高いことを示唆している．

４．結論

OCA と MA を含む溶媒中で 3D $MAPbBr_3$ ターゲットのレーザアブレーションを行うと，準 2D 臭化鉛ペロブスカイトをワンステップで合成することができた．準 2D ペロブスカイトは，OCA 有機層によって隔てられた二層または三層の臭化鉛八面体シートで構成されていた．

同様の手法により鉛フリー系の 2D ペロブスカイトを合成することができた． $MASnBr_3$ ターゲットから，LPLA により，BA カチオン層を有する 2D スズハライドペロブスカイトを合成することができた．また，得られた 2D スズハライドペロブスカイトでは，スズ系ペロブスカイトの課題であるスズの酸化を効果的に抑制できた．

以上の結果は，LPLA 法によって，無機ペロブスカイト層と様々な光学活性有機カチオンから成る 2D 構造の光機能性材料を簡便な手法で作製することができる可能性を示しており，今後のオプトエレクトロニクスおよびフォトニクス応用への展開が期待される．

謝　辞

本研究は，公益財団法人天田財団の 2023 年度一般研究開発助成(AF-2023210-B2)の援助を受けて実施しました．レーザ装置の整備にあたっては，JSPS 科研費 JP25K08409 の援助を受けました．ここに深く謝意を表します．また，本研究で実施した分析法の一部には，名古屋工業大学産学官金連携機構設備共用部門の共用設備を利用しました．これらの設備の管理者をはじめ関係各位に感謝いたします．また，本研究は，名古屋工業大学の著者の研究室に所属していた大学院生・学部生の宮澤隆之介氏と飯塚拓海氏とともに実施しました．両氏に感謝申し上げます．

参考文献

1） A. Kojima, K. Teshima, Y. Shirai, and T. Miyasaka, J. Am. Chem. Soc. 131, 6050 (2009).
2） Y. Peng, Y. Chen, J. Zhou, C. Luo, W. Tang, Y. Duan, Y. Wu, and Q. Peng, Nat. Commun. 16, 1252 (2025).
3） A. K. Jena, A. Kulkarni, and T. Miyasaka, Chem. Rev. 119, 3036 (2019).
4） T. Yamada, T. Handa, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu, J. Phys. D: Appl. Phys. 54, 383001 (2021).
5） B. Saparov and D. B. Mitzi, Chem. Rev. 116, 4558 (2016).
6） C. Katan, N. Mercier, and J. Even, Chem. Rev. 119, 3140 (2019).
7） T. Kataoka, T. Kondo, R. Ito, S. Sasaki, K. Uchida, and N. Miura, Phys. Rev. B 47, 2010 (1993).
8） K. Tanaka and T. Kondo, Sci. Tech. Adv. Mater. 4, 599 (2004).
9） K. Tanaka, T. Takahashi, T. Kondo, K. Umeda, K. Ema, T. Umebayashi, K. Asai, K. Uchida, and N. Miura, Jpn. J. Appl. Phys. 44, 5923 (2005).
10） J. Ahn, E. Lee, J. Tan, W. Yang, B. Kim, and J. Moon, Mater. Horiz. 4, 851 (2017).
11） J. Ma, C. Fang, C. Chen, L. Jin, J. Wang, S. Wang, J. Tang, and D. Li, ACS Nano 13, 3659 (2019).
12） P. J. Huang, K. Taniguchi, M. Shigefuji, T. Kobayashi, M. Matsubara, T. Sasagawa, H. Sato, and H. Miyasaka, Adv. Mater. 33, 2008611 (2021).
13） Y. Liu, W. Guo, L. Hua, X. Zeng, T. Yang, Q. Fan, Y. Ma, C. Gao, Z. Sun, and J. Luo, J. Am. Chem. Soc. 145, 16193 (2023).
14） L. Dou, A. B. Wong, Y. Yu, M. Lai, N. Kornienko, S. W. Eaton, A. Fu, C. G. Bischak, J. Ma, T. Ding, N. S. Ginsberg, L. W. Wang, A. P. Alivisatos, and P. Yang, Science 349, 6255 (2015).
15） D. B. Mitzi, M. T. Prikas, and K. Chondroudis, Chem Mater. 11, 542 (1999).
16） Y. Takeoka, K. Asai, M. Rikukawa, and K. Sanui, Bull. Chem. Soc. Jpn. 79, 1607 (2006).
17） Y. F. Miura, Y. Akagi, D. Hishida, and Y. Takeoka, ACS Omega, 7, 47812 (2022).
18） Y. Fukuta, T. Miyata, and Y. Hamanaka, J. Mater. Chem. C 11, 910 (2023).
19） M. I. Saidaminov, A. L. Abdelhady, B. Murali, E. Alarousu, V. M. Burlakov, W. Peng, I. Dursun, L. Wang, Y. He, G. Maculan, A. Goriely, T. Wu, O. F. Mohammed, and O. M. Bakr, Nat. Commun. 6, 7586 (2015).
20） B. Rawat, V. R. Battula, P. K. Nayak, D. Ghosh, and K. Kailasam, ACS Appl. Mater. Interfaces 15, 53604 (2023).
21） A. Tiwari, S. K. Sharma, A. Borah, and A. Yella, ACS Appl. Mater. Interfaces 16, 36272 (2024).

22) C. A. López, C. Abia, J. Gainza, P. Kayser, N. N. Nemes, O. J. Dura, J. L. Martínez, M. T. Fernández-Díaz, C. Álvarez-Galvá, and J. A. Alonso, Mater. Adv. 2, 3620 (2021).
23) M. Era, K. Maeda, and T. Tsutsui, Thin Solid Films 331, 285 (1998).
24) Q. Wang, X. D. Liu, Y. H. Qiu, K. Chen, L. Zhou, Q. Q. Wang, AIP Adv. 8, 025108 (2018).
25) J. Zhang, J. Wu, S. Langner, B. Zhao, Z. Xie, J. A. Hauch, H. A. Afify, A. Barabash, J. Luo, M. Sytnyk, W. Meng, K. Zhang, C. Liu, A. Osvet, N. Li, M. Halik, W. Heiss, Y. Zhao, and C. J. Brabec, Adv. Funct. Mater. 32, 2207101 (2022).
26) Y. Hamanaka, Y. Fukuta, R. Miyazawa, T. Iitsuka, and T. Kuzuya, Jpn. J. Appl. Phys. 64, 10SP12 (2025).