

電着法による FeSe 薄膜の作製と物性評価(Ⅲ)

Preparation and characterization of FeSe films by electrodeposition (III)

中部大学 [○]長屋 智紀, 高橋 誠, 鈴木 崇也, 田橋正浩, 大木戸貞夫

Chubu Univ., [○]Tomonori Nagaya, M. Takahashi, T. Suzuki, M. Tahashi, S. Ohkido

E-mail: tk14009@isc.chubu.ac.jp

1. 目的

鉄カルコゲナイド化合物であるセレン化鉄 (FeSe) は、強磁性体材料として、また、そのバンドギャップエネルギーが 1.23 eV であるため高効率積層型太陽電池の有望な下部電池材料として期待され多くの研究機関で盛んに研究が行われている。前回、我々は電極電位等を制御することによって膜組成等を容易に制御できる電着法を用いて亜セレン酸(H_2SO_3)と硫酸鉄(II)(FeSO_4)を含む酸性水溶液から FeSe 薄膜を作製し、その作製条件と膜組成等との関係について検討し報告した。この H_2SO_3 と FeSO_4 を含む酸性溶液を用いた場合、 Fe^{2+} イオンによる H_2SO_3 の還元反応が起こり (Se コロイドの生成)、また、溶液の pH によって、 H_2SeO_3 還元反応によって生成した Fe^{3+} イオンの加水分解化学種 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ コロイドと H_2SO_3 の凝集反応が起こり $[(n-2)\text{Fe}(\text{OH})_3 \cdot \text{Fe}_2(\text{SeO}_3)_3]$ が生成し沈殿する。その結果、この溶液系では、安定な溶液組成を保った状態で電着法による FeSe 薄膜の作製が出来ないという問題点がある。今回、我々はこの問題点を解決するため、 H_2SO_3 を還元して出来る Se ナノコロイドをセレンの供給源とした電着法による FeSe 薄膜作製を検討したのでその結果を報告する。

2. 実験

薄膜作製に用いた溶液は、0.001 wt% ゼラチン(保護コロイド)、1 mmol/dm³ (1 mM) Se コロイド (亜セレン酸濃度換算)と種々濃度の FeSO_4 を含む pH=2.9±0.1 の溶液である。なお、Se コロイドの調整は、所定量のゼラチンを含む 2 mM H_2SO_3 水溶液に還元剤として 4 mM アスコルビン酸を種々滴下速度で添加し Se ナノコロイド溶液を調整した。その後、 FeSO_4 を加え超純水を用いて全容量を 250mL とした。成膜は定電位電着法によって行った。なお、電着基板(作用極)、対極、および参照極には、それぞれ Ti 板、Pt 板および Ag / AgCl 電極を用いた。生成物の同定には XRD を、膜組成の測定・膜表面形状の観察には SEM / EDX を用いた。

3. 結果・考察

Figure 1 は、1 mM Se ナノコロイドと 10 mM Fe(II)SO₄ を含む溶液を用いて電着電位(E_{dep}) -0.80V で作製した薄膜の SEM 像の結果である。この結果と前回までの条件で作製した膜とを比較すると Se コロイド粒子を用いることにより平滑で緻密な膜が作製できる事が分かった。

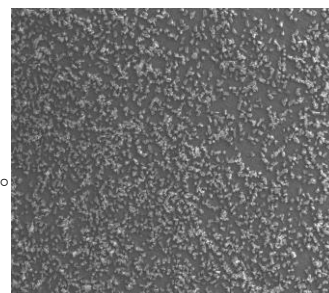


Fig1. SEM photograph of the film electrodeposited at -0.80V. (x 100)

また、EDX による組成分析から、この膜の組成は 39 at% Se、61 at% Fe であることが分かり、電着法において Se コロイドが Se の供給源として利用できることが明らかとなった。なお、コロイド溶液調整条件および電着条件と膜生成物、膜組成、表面形状等との詳細については当日発表する。