静電塗布法を用いたペロブスカイトナノ粒子の生成

Formation of perovskite nanoparticles by electrospray deposition

上智大理工¹. 上智ナノテクセンター²

竹内 啓太¹, 上田 裕之¹, 寺田 諒¹, 五十嵐 佳苗¹, 安部 僚吾¹, 菊池 昭彦^{1,2} Sophia Univ.¹, Sophia Nanotech center.²,

Keita Takeuchi¹, Hiroyuki Ueda¹, Ryo Terada¹, Kanae Igarashi¹, Ryogo Abe¹, Akihiko Kikuchi^{1, 2} E-mail: kikuchi@sophia.ac.jp

はじめに: ペロブスカイト半導体は優れた光学特性 を有し、簡便な溶液によって低コストで作製できるこ とから、太陽電池や発光ダイオードへの応用が期待さ れる魅力的な材料である[1]。我々は、これまでに静 電塗布(ESD)法による有機薄膜成膜[2]や有機ナノ粒 子の生成[3]、イオン液体薄膜と組合わせた有機薄膜 単結晶の成長[4]等について報告してきた。本研究で は、静電塗布法でペロブスカイト原料を含む微細液滴 を噴霧し、溶媒乾燥によりペロブスカイトナノ粒子を 生成する手法について検討を行った。通常の溶液合成 法ではナノ粒子の凝集を抑制するためのリガンドが 必要だが、静電塗布法ではリガンドが不要で、均一な ペロブスカイトナノ粒子薄膜の形成が期待される。

実験: Fig.1 に静電塗布装置の構成図とナノ粒子生成 の概念図を示す。噴霧溶液には、クロロベンゼン、ア セトニトリル、およびジメチルホルムアミドをそれぞ れ 65、30、5 vol%の割合で混合した溶媒に CH₃NH₃ (=MA)PbI3をMAIとPbI2を等モル比で濃度1.0 mg/ml に溶解した溶液を用いた。溶液供給速度および基板-ノズル間距離は、それぞれ 2.0 ul/min および 7 cm に 固定し、ノズル電圧 5.1 kV、引出電極電圧 3.0 kVの 条件で p型(100)Si 基板表面に向けて 40 分間噴霧した。 基板表面に堆積した MAPbI₃粒子の形状を電界放射型 電子顕微鏡(FE-SEM)で観察し、直径分布を評価した。 発光特性の評価には、波長 325 nm の He-Cd レーザ励 起ホトルミネッセンス(PL)法を用いた。

結果と考察: Fig.2 に基板表面に堆積したナノ粒子の SEM 像と画像解析によって算出したナノ粒子直径分 布のヒストグラムを示す。ナノ粒子は凝集せずに基板 面に均一に堆積していることが確認された。粒子形状 はナノ粒子の直径は最大105nm であり、75nm と10nm 以下にピークを持つ二峰性の直径分布となった。これ は、噴霧直後の液滴がレイリー分裂によって主液滴と 微小な二次液滴に分裂したためであると考えられる。 堆積したナノ粒子の室温 PL スペクトルを Fig. 3 に示 す。ピーク波長は741nmであり、MAPbI3ナノ粒子が 形成されたと考えられる。

まとめ:本研究では、静電塗布法を用いて直径 100nm 以下の MAPbI₃ナノ粒子の生成を行った。本手法を用

いたペロブスカイト光・電子デバイス技術への応用が 期待される。

謝辞:日頃ご支援いただく上智大学岸野克巳教授、下 村和彦教授に感謝します。本研究の一部は、JSPS 科 研費 JP16K14260 および JP17H02747 の援助を受けて 行われた。

参考文献: [1] A. Kojima, et al. J. Am. Chem. Soc., 2009, 131, 6050-6051 [2] Y. Niinuma, et al. Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 04EL01. [3] 竹内 他 第 78 回応用物理学会 秋季学術講演会(2017) 6p-A413-13. [4]上田 他 第 64 回応用物理学会春季学術講演会(2017) 14a-313-3.



Fig.1. Schematic diagram of ESD system (right) and mechanism of nanoparticle generation (left).



Fig.2. SEM image and diameter distribution of MAPbI₃ nanoparticles deposited by ESD.



Fig.3. PL spectra of perovskite nanoparticles deposited on Si substrate by ESD.