

研究成果概要報告書

産業技術総合研究所 古郷 敦史

本研究では、環境に安全で非有害なアルコール溶媒を用いた有機・無機ペロブスカイト結晶層の製膜方法について検討した。

$\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnBr}_{3-x}\text{I}_x$ ペロブスカイトは、 SnO_2 基板に SnBr_2 を含んだ 2-プロパノール (IPA) 溶液をスピコートして乾燥した後、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ の IPA 溶液をスピコートして製膜した。X 線結晶解析の結果、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnBr}_{3-x}\text{I}_x$ ペロブスカイトが生成していることがわかった。この時、 SnBr_2 と $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ の濃度によってペロブスカイト内のイオン組成が変化し、エネルギーギャップを制御できることがわかった。一方、ペロブスカイト層のモルフォロジーも変化し、 SnBr_2 溶液の濃度が高いほどペロブスカイトの結晶サイズが大きくなることがわかった。これは、最初に製膜した SnBr_2 膜が厚いほどペロブスカイトの結晶成長速度が大きく、結晶核が少なくなることを示す。IPA 以外のアルコール溶媒も検討したが、IPA 溶媒を用いた場合が最も均質で光吸収の強いペロブスカイト膜を製膜できることがわかった。これは、IPA を溶媒に用いた場合に、 SnBr_2 の結晶性が低くなり、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ と反応しやすくなるためと考えられる。

$\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 以外に、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{Br}$ 、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{Cl}$ 、 $\text{CH}(\text{NH}_2)_2\text{I}$ 、 $\text{CH}(\text{NH}_2)_2\text{Br}$ 溶液 (IPA 溶媒) を用いて、ペロブスカイトの製膜を検討したところ、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ を用いた場合が、最もペロブスカイトを生成しやすく、エネルギーギャップが小さくなり光吸収波長域が大きくなることがわかった。

さらに、 SnBr_2 溶液と $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ 溶液を別々に基板に塗布する 2 段階法を簡便化するため、 SnBr_2 と $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ を一度に塗る方法を検討した。IPA に添加剤を導入した場合、 SnBr_2 と $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ により生成したペロブスカイトが IPA 中に分散し、これを基板に塗布することで、1 ステップでペロブスカイトを製膜できることがわかった。