

日本-V4 国際共同研究「先端材料」 2021年度 年次報告書	
研究課題名（和文）	ペロブスカイト量子ドットに端を発する広帯域 X 線検出器の創生
研究課題名（英文）	Perovskites Quantum Dots based Broadband Detectors - from a quantum dot to a functional detector
日本側研究代表者氏名	千葉 貴之
所属・役職	山形大学 大学院有機材料システム研究科・助教
研究期間	2021年11月1日 ～ 2024年10月31日

1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
千葉 貴之	山形大学 大学院有機材料システム研究科 助教	研究代表
城戸 淳二	山形大学 大学院有機材料システム研究科 教授	プロジェクト全般に対する助言
増原 陽人	山形大学 大学院理工学研究科 教授	量子ドット合成・解析

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

本年度は、ペロブスカイト量子ドットの合成・精製・薄膜形成技術を確立し、X線検出器へと応用する。X線照射下における光電変換特性を評価し、材料・積層技術・デバイス開発などの要素技術へとフィードバックする。

3. 日本側研究チームの実施概要

本プロジェクトでは、我々日本側で合成・精製したペロブスカイト量子ドットインクをスロバキア科学アカデミーに送付し、X線照射による光電変換特性評価を予定している。しかしながら、ペロブスカイト量子ドットは、合成後の洗浄工程や配位子置換により、量子ドット表面の配位子密度が減少することから、分散性や結晶構造に課題がある。そこで本研究では、ペロブスカイト量子ドットの分散性と結晶構造の安定性を両立するため、臭化鉛ドーブによる量子ドットの結晶成長法を開発した。

通常、イオン性のペロブスカイト量子ドットは、アルコールなどの極性溶媒下では配位子の脱離や消光が起こるため、配位子置換やハロゲンアニオン置換などのポストトリートメントは無極性溶媒下で行う必要がある。しかしながら、臭化鉛はジメチルスルホキシド(DMSO)などの極性溶媒に可溶であるが、トルエンなどの無極性溶媒には難溶性を示す。そこで、本年度は、四級アンモニウム塩のジドデシルジメチルアンモニウムブロミド(DDAB)を相間移動触媒として用いることで、臭化鉛が無極性溶媒のトルエンに溶解することを見出した。

合成したCsPbBr₃と臭化鉛/DDABのトルエン溶液を80°Cにて加熱攪拌することで、CsPbBr₃が結晶成長することを明らかにし、発光量子収率の大幅な向上と蛍光寿命の長寿命化を確認した。また、臭素/鉛の組成比が2.60から3.00に増加していることから、DDABおよび臭化鉛に含まれる臭素アニオンが、ハロゲン欠陥の補填に寄与していると考えられる。未処理では3時間ほどで凝集が見られたのに対し、二次的に成長したCsPbBr₃では、2ヶ月後も凝集することなく、良好な分散性を示した。さらに、熱重量分析から配位子との強固な結合を示唆しており、二次的な結晶成長が分散安定性の向上に極めて有効な手法であることを明らかにした。

これらのサンプルをスロバキア科学アカデミーに送付し、X線照射下による光電変換特性を現在評価中である。また、ハロゲンを臭素(Br)からヨウ素(I)に変更したCsPbI₃でも同様の検討を実施しており、サンプルの送付を予定している。