

ハライド系ペロブスカイト太陽電池材料 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 薄膜における 光キャリア再結合ダイナミクス

Photocarrier recombination dynamics in lead-halide perovskite $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ thin films for solar cell application

○山田 泰裕¹, 遠藤 克¹, 若宮 淳志¹, 金光 義彦^{1,2}

Kyoto Univ.¹, JST-CREST²

E-mail: yamada.yasuhiro.6c@kyoto-u.ac.jp

鉛ハライド系ペロブスカイト半導体 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbX}_3$ (X=Cl, Br, and I) は低い作製コスト・高い変換効率・高いフレキシビリティを兼ね備えた新しい太陽電池材料として近年注目が集まっている。2009 年の最初の報告以来[1]、ペロブスカイト太陽電池の変換効率は急激に向上しており、現時点で 19.3% にまで到達しているとの報告がある[2]。このような高い変換効率の鍵となる物理的なメカニズムの解明は重要な課題であり、そのためには詳細な光学特性の理解が必要不可欠である。我々はこれまでに、バンド端近傍の光学スペクトルを様々な分光手法（拡散反射・発光・光伝導・過渡吸収測定）で研究しバンドギャップエネルギー ($E_g=1.61$ eV) を決定したほか、室温でのバンド端吸収スペクトルがアーバックテイルに支配されていることを明らかにした[3]。光電変換過程の全体像を理解するためには、さらに光励起キャリアの緩和・再結合ダイナミクスを解明する必要がある。そこで我々は、ストリークカメラを用いた時間分解発光分光および白色ポンプ-プローブ法によるフェムト秒過渡吸収分光を行い、室温での光キャリア再結合過程を研究した。試料として SiO_2 ガラス基板上にスピコート法で製膜した $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ 薄膜を用いた。試料を安定化させるため、測定は作製後 3 日以上 Ar 雰囲気下の暗所で保管した後に行った。

発光スペクトルは 1.59eV 付近にピークをもっており、スペクトル形状は励起強度・エネルギー・時間に依存しない。励起直後の発光強度は、 10 nJ/cm² 以上では励起光強度の二乗に比例しており、二体キャリアの輻射再結合過程を示唆している。また、発光の緩和寿命は、 40 nJ/cm² 以上で励起光強度の増大とともに速くなる。このような励起密度に依存した光キャリアダイナミクスは、電子-正孔の二体輻射再結合および欠陥/不純物によるトラッピングを考慮した単純なレート方程式でよく再現され、光キャリアトラッピングレートと電子正孔輻射再結合係数を決定することに成功した。過渡吸収ダイナミクスも同じレート方程式で再現できることを確認している。この結果は、室温において光励起によって生成した電子と正孔は自由キャリアとして振る舞っており、励起子を形成していないことを明確に示している。

本研究は、住友電工グループ社会貢献基金、JST-CREST、JST さきがけの援助による。

[1]A. Kojima, *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **131**, 6050 (2009).

[2]R. F. Service, *Science* **344**, 458 (2014).

[3]Y. Yamada, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **7**, 032302 (2014).