

ペロブスカイト構造における局所電荷キャリア移動度と再結合過程

Local Mobility and Recombination Process of Charge Carriers in Perovskite Structure

阪大院工¹, 九工大生命² ○大賀 光¹, 佐伯 昭紀¹, 尾込 裕平², 早瀬 修二², 関 修平¹

Osaka Univ.¹, Kyutech.² ○Hikaru Oga¹, Akinori Saeki¹, Yuhei Ogomi², Shuzi Hayase², Shu Seki¹

E-mail: saeki@chem.eng.osaka-u.ac.jp

メチルアンモニウム、ハロゲン、鉛から成る有機金属ペロブスカイトを用いた全固体型太陽電池が注目を集めている。今後の変換効率向上にむけ、有機金属ペロブスカイト太陽電池の優れた光電変換機構の解明と、その原理に基づいたボトムアップ的アプローチによる材料設計が強く求められている。そこで本研究では時間分解マイクロ波伝導度 (Time-resolved microwave conductivity, TRMC) 測定法を用いてペロブスカイト薄膜の電荷キャリアダイナミクスを評価した^[1]。TRMC 法は、通常の電気評価と異なり電極を必要とせず、パルスレーザー照射によって生成した電荷キャリアによるマイクロ波の吸収量から過渡光電気伝導度を評価する手法である。したがって、ペロブスカイトないし下地のメソポーラス酸化チタン膜 (mp-TiO₂) とのコンポジット膜自身の電気特性を直接評価することができる。

Figure 1 にペロブスカイト単膜、ペロブスカイト/mp-TiO₂ 膜、ペロブスカイト/mp-Al₂O₃ 膜の TRMC 信号最大値 ($\phi\Sigma\mu_{\max}$) のレーザー強度依存性を示す。比較のため、mp-TiO₂ と有機薄膜太陽電池材料 (P3HT:PCBM) の結果も示した。mp-TiO₂ 膜単体では励起密度の上昇に伴い、トラップフィリングに帰属される $\phi\Sigma\mu_{\max}$ の極大が見られるのに対し、ペロブスカイト/mp-TiO₂ 膜ではそのような挙動は見られない。さらに低励起強度領域での $\phi\Sigma\mu_{\max}$ から、ペロブスカイトは mp-TiO₂ の有無にかかわらず 20 cm²/Vs 程度の高い局所移動度を持つことが明らかとなった。代表的な有機薄膜太陽電池である P3HT:PCBM (0.22 cm²/Vs) と比べると、100 倍程度移動度が高い^[2]。また、減衰時間の解析から電荷キャリア再結合定数 k_2 を評価したところ、Langevin モデルから計算される再結合定数 k_L と比べて 5 桁ほど再結合が抑制されている (Figure 2)。さらに mp-TiO₂ と組み合わせた薄膜では、電子が一旦 mp-TiO₂ に流れ込んでからペロブスカイトと再結合する過程が含まれるために、再結合速度定数 k_2 はさらに 1 桁抑制された。当日は、Spiro-OMeTAD を塗布した膜の結果を含めて議論する。

[1] H. Oga, A. Saeki, Y. Ogomi, S. Hayase, S. Seki, *Manuscript in preparation*.

[2] A. Saeki, M. Tsuji, S. Seki, *Adv. Energy Mater.* **2011**, *1*, 661.

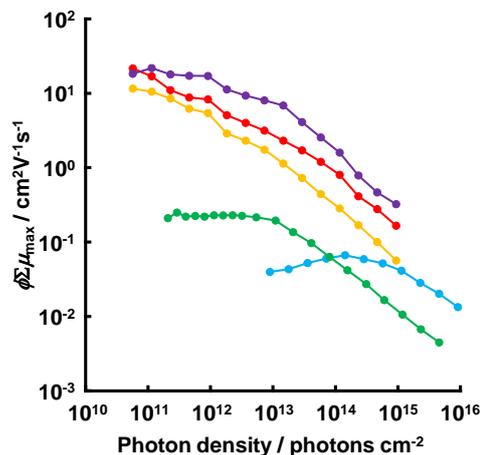


Figure 1. Laser (355 nm) intensity dependence on $\phi\Sigma\mu_{\max}$ found for mp-TiO₂ (blue), perovskite (red), perovskite /mp-TiO₂ (purple), perovskite/mp-Al₂O₃ (yellow), and P3HT:PCBM (green).

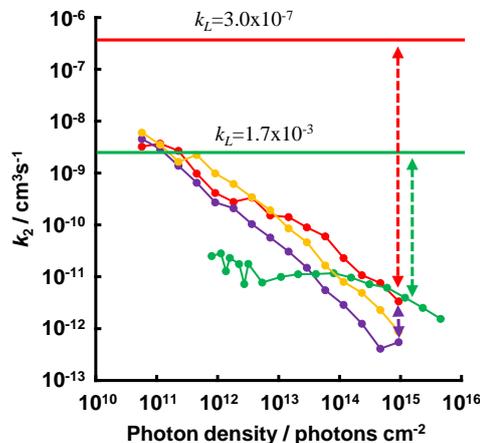


Figure 2. Bulk recombination rates of perovskite (red), perovskite/mp-TiO₂ (purple), perovskite /mp-Al₂O₃ (yellow) and P3HT:PCBM (green). The Langevin rates, k_L , calculated for perovskite and P3HT:PCBM are indicated by the horizontal solid lines.