## 鉛ハライドペロブスカイト CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> 単結晶における 光キャリア再結合ダイナミクス

Photocarrier recombination dynamics in lead-halide perovskite CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> single crystals

京大化研 <sup>○</sup>山田 琢允, 山田 泰裕, 西村 秀隆, 中池 由美, 遠藤 克, 若宮 淳志, 村田 靖次郎, 金光 義彦

Kyoto Univ. °Takumi Yamada, Yasuhiro Yamada, Hidetaka Nishimura, Yumi Nakaike, Masaru Endo, Atsushi Wakamiya, Yasujiro Murata and Yoshihiko Kanemitsu E-mail: yamada.takumi.42u@st.kyoto-u.ac.jp

鉛ハライドペロブスカイト CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbX<sub>3</sub> (X=Cl, Br and I) が優れた新しいタイプの太陽電池材料として注目されている。2009 年にペロブスカイト半導体が初めて太陽電池に応用されて以降[1]、ペロブスカイト太陽電池の変換効率は急上昇しており、既に最高効率は 20.1 %に達している[2]。しかし、ペロブスカイト太陽電池が高い変換効率を示す物理的起源はまだ明らかになっていない。それを解明するためには、基礎的な光学特性の理解が重要となる。我々は CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> 薄膜において太陽電池の効率を決定するバンド端近傍での光学特性[3,4]や光キャリアダイナミクス[5]の研究を行ってきたが、薄膜試料では作製条件によって結晶性や欠陥密度が大きく変化し、光学特性や太陽電池特性に影響を与えることが知られている。そのため、材料固有の性質を解明するには、単結晶試料での研究を行う必要がある。本研究では、前回報告した CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> 単結晶に加えて、より結晶性の高い単結晶が作製できる CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> 単結晶についても研究を行い、両者の比較からペロブスカイト半導体の特性を解明することを試みた。単結晶試料は溶液成長法によって作製した。また、時間分解発光分光とフェムト秒過渡反射分光を用いて、光キャリアの緩和・再結合ダイナミクスを研究した。

CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> 単結晶の発光スペクトルは、1 光子励起(2.82 eV)では励起直後は 2.32 eV にピークを持ち、CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> 単結晶の場合と同様に時間と共に発光ピークが低エネルギー側へシフトした [5]。これは、光キャリアの浅いトラップ準位への緩和によるものと考えられる。一方で、2 光子励起(1.41 eV)では発光スペクトルは 2.19 eV にピークを持ち、ピークシフトは観測されなかった。 発光ダイナミクスは非指数関数型の緩和を示し、励起光強度と共に発光寿命は短くなった。これは電子と正孔の 2 体輻射再結合によって理解できる。講演では、過渡反射スペクトルおよびダイナミクスと併せて、ペロブスカイト半導体の光キャリア緩和・再結合過程について議論する。

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**, 6050-6501 (2009). [2] M. A. Green, *et al.*, Prog. Photovolt: Res. Appl., **23**, 1–9 (2015). [3] Y. Yamada, *et al.*, Appl. Phys. Exp., **7**, 032302 (2014). [4] Y. Yamada *et al.*, IEEE J. Photovolt. **5**, 401 (2015). [5] Y. Yamada, *et al.*, J. Am. Chem. Soc., **136**, 11610-11614 (2014). [6] 山田琢允など,第 75 回応用物理学会秋季大会(18p-A28-14)