臭素系ペロブスカイト型半導体 CH3NH3PbBr3の励起子特性

Excitonic properties of lead-bromide-based perovskite-type semiconductor

CH₃NH₃PbBr₃

^O佐野 惇郎¹、中村 唯我¹、松下 智紀^{1,3}、橋本 翼²、清田 祐貴²、宇田川 洋祐²、石井 里歩²、

加賀屋 葉子²、欅田 英之^{2,3}、竹岡 裕子^{2,3}、江馬 一弘^{2,3}、近藤 高志^{1,3}

(1. 東大工、2. 上智大理工、3. JST -ALCA)

^oJ. Sano¹, Y. Nakamura¹, T. Matsushita^{1,3}, T. Hashimoto², Y. Kiyota², Y. Udagawa², R. Ishii²,

Y. Kagaya², H. Kunugita^{2,3}, Y. Takeoka^{2,3}, K. Ema^{2,3}, T. Kondo^{1,3}

(¹ Univ. of Tokyo, ² Sophia Univ., ³ JST-ALCA)

E-mail: sano@castle.t.u-tokyo.ac.jp

この数年の間にペロブスカイト太陽電池のエネルギー変換効率は飛躍的に上昇しており、現在 世界中で活発に研究が行われている。だがこの材料中のキャリアの振る舞いについて未だ不明な 点が多く、光励起されたキャリアが励起子を形成するのか、フリーキャリアの状態でいるのかに ついても現在議論が続いている。沃素系ペロブスカイト CH₃NH₃PbI₃ 薄膜の光学特性や励起子特性 とその温度依存性についてはすでに研究が行われているが[1, 2]、臭素系ペロブスカイト CH₃NH₃PbBr₃ については報告がない。そこで、今回我々は CH₃NH₃PbBr₃の単結晶と多結晶薄膜に ついて励起子特性とその温度依存性について調べた。

単結晶試料は CH₃NH₃PbBr₃ 粉末をジメチルホルムアミドに溶解し溶媒蒸発法で作製し、多結晶 薄膜はガラス基板上に PbBr₂ と CH₃NH₃Br を蒸着源とする共蒸着法で作製した。単結晶では発光・ 反射スペクトルを、多結晶薄膜では発光・吸収スペクトルを 4 K - 300 K の温度範囲で測定した。 その中で、4 K (δ相)、160 K (β相)、300 K (α相) における単結晶の反射スペクトルと多結晶薄 膜の吸収スペクトルを Fig. 1 に示す。測定した全温度領域で、単結晶の反射スペクトルには励起 子に起因する形状が見られ、多結晶薄膜の吸収スペクトルにも励起子ピークが現れる。これらの ことから臭素系ペロブスカイト CH₃NH₃PbBr₃ では、単結晶、多結晶薄膜に関わらず室温以下の全 ての相で励起子が安定に存在するといえる。この結論は、CH₃NH₃PbBr₃ の励起子束縛エネルギー が 76 meV であるという報告[3]と矛盾がない。

[1] V. D'Innocenzo et al.: Nature Commun. 5, 3586 (2014).
[2] Y. Yamada et al.: J. Am. Chem. Soc. 136, 11610-11613 (2014).
[3] K. Tanaka et al.: Solid State Commun. 127, 619–623 (2003).



