

CH₃NH₃PbBr₃ 単結晶の時空間分解発光ダイナミクス

Time- and space-resolved photoluminescence dynamics in CH₃NH₃PbBr₃ single crystals

○山田 琢允、中池 由美、若宮 淳志、金光 義彦

(京大化研)

○Takumi Yamada, Yumi Nakaike, Atsushi Wakamiya, and Yoshihiko Kanemitsu

(ICR, Kyoto Univ.)

E-mail: yamada.takumi.42u@st.kyoto-u.ac.jp

ハロゲン化鉛ペロブスカイト半導体 CH₃NH₃PbX₃ (X = Cl, I, Br) は 2009 年に初めて太陽電池に応用されて以降、その太陽電池変換効率は既に 20%を越えており、実用化に向けて精力的に研究が行われている[1,2]。ペロブスカイト太陽電池が高い変換効率を示す理由の一つとして、室温では励起された電子正孔対は乖離して自由キャリアとして存在することが挙げられる[3]。さらにハロゲン化鉛ペロブスカイトは、Si などの実用太陽電池をボトムセルとして用いるタンデム型太陽電池への応用が期待されている[4]。特に 2.3 eV の大きなバンドギャップをもつ臭化鉛ペロブスカイト CH₃NH₃PbBr₃ はタンデム型太陽電池のトップセル材料として有用であり、デバイスへの応用に向けて光キャリアダイナミクスを詳しく理解する必要がある。また、物質本来の性質を解明するためには単結晶試料を用いて研究を行う必要がある。

光キャリアダイナミクスを研究する方法の一つとして、時間分解発光分光がある。我々のグループでは CH₃NH₃PbX₃ (X = I, Br) 単結晶を用いて、試料表面及び試料内部全体を選択的に励起し時間分解発光測定を行うことで、自由キャリアの拡散が表面励起の発光の初期緩和を支配することを実験的に示した[5,6]。またこれらの結果から、ペロブスカイト単結晶の発光ダイナミクスを議論する上では光キャリアの空間的分布を考慮する必要があることが明らかになった。

そこで本研究では、開発した 2 光子励起発光顕微鏡を用いて光励起キャリアの空間的位置を選択しながら時間分解発光測定を行い、CH₃NH₃PbBr₃ 単結晶の発光ダイナミクスを詳しく研究した。試料表面から励起位置を深くしていくにつれて励起直後の発光ピークがレッドシフトした。また発光緩和曲線は非指数関数的な減衰で、励起位置を深くするとともに寿命が長くなった。これらのデータは、光励起キャリアの拡散現象とフォトンリサイクリング効果を考えることで説明できることが分かった。

本研究は、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] W. S. Yang *et al.*, *Science* **348**, 1234 (2015).
- [3] Y. Yamada *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **136**, 11610 (2014).
- [4] P. Löper *et al.*, *IEEE J. Photovolt.* **4**, 1545 (2014).
- [5] Y. Yamada, T. Yamada *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **137**, 10456 (2015).
- [6] T. Yamada, Y. Yamada *et al.*, *Adv. Electron. Mater.* **2**, 1500290 (2016).