

有機無機ペロブスカイトの格子振動に関する第一原理計算

Lattice dynamics of perovskite compounds by first-principles calculation

○(D)河野 翔也¹, 飯久保 智^{1,2} (九工大生命体¹, JST-CREST²)°Shoya Kawano¹, and Satoshi Iikubo^{1,2} (Kyushu Inst. Tech.¹, JST-CREST²)

E-mail: iikubo@life.kyutech.ac.jp

有機無機ペロブスカイト化合物は、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (MAPbI₃) が太陽電池材料の光吸収層として注目を集めているが、最近では $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{SnI}_3$ (MASnI₃) が比較的高い熱電特性 (熱電性能指数 $ZT \sim 0.2$ [1]) を示すことから熱電材料としても注目されている。これらの有用な機能性の発現に対し、有機分子を含む格子振動が、電気伝導を担う Pb-I、および Sn-I のネットワークにどのような影響を及ぼしているかは非常に興味深い。そこで本研究では、これらのペロブスカイト化合物について第一原理計算を用いた格子振動の計算をおこない、得られた熱伝導率等について報告する。

本研究ではペロブスカイト化合物 MAPbI₃ と MASnI₃ をとりあげた。第一原理計算コード VASP と phono3py を用い原子間力の調和項と非調和項を求め、フォノン分散関係や格子熱伝導率等の計算を行った。Fig. 1 は MAPbI₃ と MASnI₃ の立方晶のフォノン状態密度と分散関係である。フォノン状態密度から Pb や Sn、I は 10 THz 以下の低周波数の部分に分布していることがわかる。また MAPbI₃ と MASnI₃ とでは、フォノン分散は非常に類似していることがわかる。どちらにも負の周波数のモードが現れているが、これは $T = 0$ では立方晶ペロブスカイト構造が不安定なために現れており、低対称な構造へ相転移することを示唆している。このような結果は先行研究とも整合性があることを確認できる [2]。MAPbI₃ と MASnI₃ の格子熱伝導率の温度依存性をみると、両者はほぼ同じ格子熱伝導率を有しており、元素の置換による格子熱伝導率への寄与は低いものと推察できる。

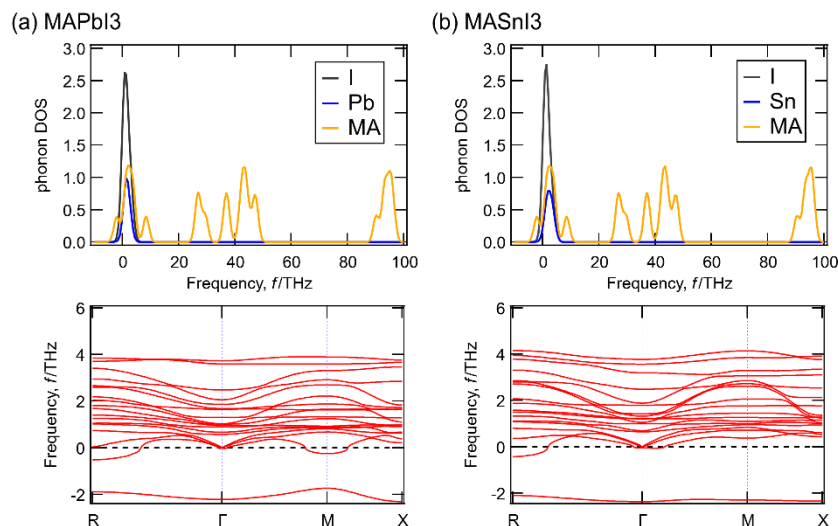


Fig. 1 Calculated partial phonon density of states and phonon dispersion of (a) MAPbI₃ and (b) MASnI₃.

[1] X. Mettan et al., The Journal of Physical Chemistry C 119, 11506 (2015).

[2] R. Singh and G. Balasubramanian, RSC Advances 7, 37015 (2017).