

## Pb/Sn ペロブスカイトの光誘起 GHz 複素誘電率の特異応答

## Anomalous Behavior of GHz Complex Permittivity of Pb/Sn-Based Perovskite upon Photoexcitation

阪大院工<sup>1</sup>, JST さきがけ<sup>2</sup> ○山田 研人<sup>1</sup>, 佐伯 昭紀<sup>1,2</sup>Osaka Univ.<sup>1</sup>, JST-PRESTO<sup>2</sup> ○Kento Yamada<sup>1</sup>, Akinori Saeki<sup>1,2</sup>

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

鉛ハライドペロブスカイトは、その小さな励起子束縛エネルギー、高い電子正孔移動度や長いキャリア拡散長などの優れた電子物性を有することから、太陽電池や発光ダイオードにおいて高い性能を発揮している。しかし、これら光電子物性は詳細に研究されているにもかかわらず、誘電特性については十全な理解が進んでいない。また、スズペロブスカイトは非鉛ペロブスカイト太陽電池の活性層として期待されており、近年は7~9%の変換効率が報告されるようになってきた。

そこで、時間分解マイクロ波伝導度 (TRMC) 法を用いて Pb/Sn 混合ペロブスカイトの過渡伝導度を評価したところ、特異な光誘起誘電応答が観測された。TRMC では、パルスレーザー照射によって過渡的に生成した電荷キャリアによる誘電損失 (伝導度実部) と誘電率変化 (伝導度虚部) を評価できる。酸化チタンや有機半導体などの光電変換材料中に生成する電荷キャリアは、正の伝導度実部と負の伝導度虚部、すなわち実虚部共に正の複素誘電率変化を与える<sup>[1]</sup>。しかし、メチルアンモニウムカチオン (MA)、Pb/Sn 混合金属および Br/I ハライドを有するペロブスカイトでは、共に負の複素誘電率変化が観測された (Fig. 1)<sup>[2]</sup>。この未知の現象の起源を究明するため、代表的な無機誘電体ペロブスカイト材料: チタン酸バリウム (BTO) とチタン酸ストロンチウム (STO) との比較実験、および ABX<sub>3</sub> の組成を変えた種々のペロブスカイトの光誘起誘電応答を探索した。温度依存性やマイクロ波周波数依存性、励起光波長依存性からも通常の電荷キャリアとは異なる機構が示唆された。さらに、紫外励起光に加え、近赤外光を照射することでトラップ電荷の再励起を試みた<sup>[2,3]</sup>。この pump-push TRMC (PP-TRMC) では二光子吸収による信号増加に加え、わずかな電荷トラップの非束縛過程が観測された。以上の結果を基に、異常誘電応答は電荷トラップおよび MA 双極子の回転運動の抑制が関与していることが分かった。

これまで TRMC 法は電荷キャリアによる誘電損失の増加に注目してきたが、Pb/Sn ペロブスカイトで初めて観測された「複素誘電率の過渡減少」は他の誘電材料でも観測される可能性がある。

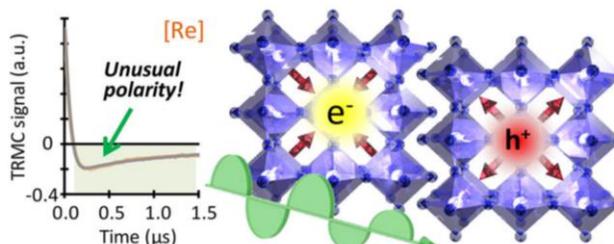


Figure 1. Schematic illustration of unusual polarity in Sn/Pb perovskites.

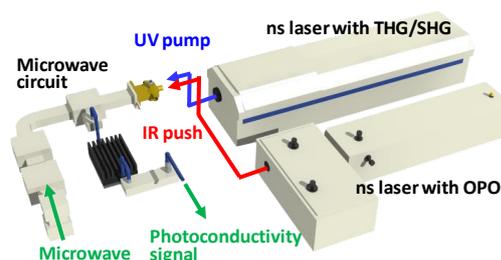


Figure 2. Schematic of pump-push TRMC system.

[1] A. Saeki, Y. Yasutani, H. Oga, S. Seki, *J. Phys. Chem. C* **2014**, *118*, 22561.

[2] K. Yamada, R. Nishikubo, H. Oga, Y. Ogomi, S. Hayase, S. Kanno, Y. Imamura, M. Hada, A. Saeki, *ACS Photonics* **2018**, DOI: 10.1021/acsp Photonics.8b00422.

[3] K. Yamada, A. Saeki, *J. Photopolym. Sci. Technol.* **2018**, in press.