金属ハライドペロブスカイト LED の劣化機構の解明

Discussion on degradation mechanisms of metal halide perovskite LEDs

°(M1)渡辺 慧 [1,2], 松島 敏則 [1,2], 安達 千波矢 [1,2] (九大 OPERA[1], JST・ERATO[2])
°Satoru Watanabe[1,2], Toshinori Matsushima[1,2], Chihaya Adachi[1,2]
(OPERA Kyushu Univ.[1], JST・ERATO[2]) E-mail: adachi@cstf.kyushu-u.ac.jp

ペロブスカイトはスピンコート法などの簡便な方法で薄膜化でき、さらに無機骨格を利用した高速キャリア輸送及び半値幅が小さい発光などの特徴を有する。このため、ペロブスカイトを発光層とした LED に大きな注目が集まっている。最近では 20%を超える極めて高い外部量子効率が報告された(nature **562**, 249, 2018)。しかし、その耐久性には多くの課題が残されている。そこで本研究ではペロブスカイト LED の高耐久性化を目指して劣化機構を検討した。

擬二次元ペロブスカイト $PEA_2FA_2Pb_3Br_{10}$(PEA:フェネチルアンモニウム、FA:ホルムアミジニウム)を発光層とする LED を作製し、J=1 mA/cm^2 の定電流で駆動させたところ、輝度が 70%に減少するまでの時間(LT70)は約 0.4 時間であった(Fig. 1)。同じ組成のペロブスカイト膜に対して、LED に用いた J=1 mA/cm^2 に相当する 365nm の励起光下で PL 強度の減衰を測定すると LT70 は約 8 時間であった(Fig. 1)。電流励起よりも光励起の方がペロブスカイトの励起状態は安定であった。PL 減衰後に膜の吸収率に大きな変化は見られないが、過渡 PL 寿命に大幅な減少が観測された。これは、ペロブスカイトが僅かに分解することによりクエンチャーとして振舞う金属鉛が膜中に形成されたことに起因する。

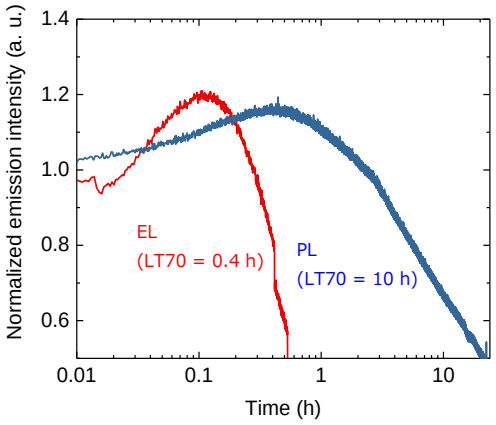

Fig 1. EL and PL decays of perovskite films.

ペロブスカイト電子オンリー素子(EOD)において、電流を流すと PL 減衰が加速された(Fig. 2)。電流を流していない状態(UV)では LT70=3h であったが、電流を流すと LT70=1h に減少した(UV+Current)。同様な傾向がペロブスカイトホールオンリー素子でも観測された。これらの結果から、未だ理由は明らかではないが、駆動中の LED の様に電荷と励起状態が混在していると安定性が低下することを見出した。

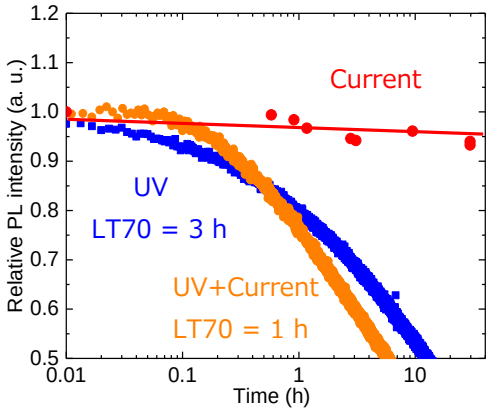

Fig 2. PL decays under different operation conditions for EODs.

他方、電流の通電のみ(Current)を行っても PL 強度に大きな変化は見られなかった(Fig. 2)。この結果は、ペロブスカイトの電気化学的安定性は優れていることを示すものである。また、最近我々が報告したペロブスカイトをホスト層(Adv. Mater, **30**, 1802662, 2018)やキャリア輸送層(nature, in press)として用いたペロブスカイトの励起状態を形成させない有機 EL では極めて優れた耐久性が得られ、これらの結果を矛盾なく説明することができる。

© 2019年 応用物理学会