



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Microspectroscopic investigations and correlations of photoluminescence in microcrystals, nanocrystals and assemblies of lead halide perovskites [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Ghimire, Sushant
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(環境科学)
Dissertation Number	甲第13896号
Issue Date	2020-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/78588
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Ghimire_Sushant_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士（環境科学） 氏名 Ghimire Sushant

審査委員	主査	教授	Biju Vasudevan Pillai
	副査	教授	八木 一三
	副査	教授	野呂 真一郎
	副査	准教授	高野 勇太
	副査	教授	久木 一朗（大阪大学大学院基礎工学研究科）

学位論文題名

Microspectroscopic investigations and correlations of photoluminescence in microcrystals, nanocrystals and assemblies of lead halide perovskites

（ハロゲン化鉛ペロブスカイトのマイクロ結晶、ナノ結晶および集合体の発光挙動に関する顕微分光学的相関研究）

ハロゲン化鉛ペロブスカイトは長距離キャリア拡散、大きな吸収係数、高い欠陥耐性、広く調整可能な光色調、および高い発光量子収率を示すため、エネルギー捕集材料や発光材料として注目を集めている物質である。ギムリ氏は博士論文において、ハロゲン化鉛ペロブスカイトのナノ結晶、マイクロ結晶、およびそれらの最密集合体における電荷キャリアダイナミクスを主研究対象とし、各種の興味深い研究成果をあげた。

まず、ピエゾ化学的に合成された密充填ペロブスカイト結晶に対しレーザー分光法を用いることで、光子リサイクル現象と特徴的なエネルギー移動現象を明らかにした。臭化物-ヨウ化物ペロブスカイト混合物においてバンドギャップヘテロ接合体を構築し、光照射を引き金とする発光挙動変化を観測・解析することによって、臭化物-ヨウ化物-リッチドメインへの非放射エネルギー移動と光子リサイクルにおいて重要となる要素の同定に成功した。また、エネルギーアクセプター（ヨウ化物リッチドメイン）による光励起状態における光励起ドナー（臭化物リッチドメイン）の高速緩和により、ヘテロ接合を介した非放射エネルギー移動の観測に成功したことは、鉛ペロブスカイト材料の高性能材料化において重要な知見であると認められる。

次にギムリ氏は、自己組織化クラスターを利用して密に詰められたペロブスカイトナノ結晶に関しての、光照射による低強度励起と高強度励起間での光生成電荷キャリアの長距離拡散に関する研究を行った。そして特筆すべきは、多数の電荷キャリアが生成される高強度励起条件では、高密度の電荷が空間的に閉じ込められているため、放射再結合と増幅された光発光の割

合が高くなることを見出した。キャリアの移動に加えて、このように密集したペロブスカイトの自己組織化における再吸収放出による光子のリサイクルは、材料の光発光特性ダイナミクスを複雑にする可能性があるが、ギムリが得た知見は本ダイナミクスの根源的理解をもとにした材料特性の改良に直結する成果だと期待される。

また、バックミンスターフラーレンをドーピング剤と用いて光活性化ペロブスカイトナノ結晶膜を作成することで、光電変換効率が向上可能であることを見出した。向上の理由として、ペロブスカイトナノ結晶フィルムからフラーレンへの電子移動によって、発光強度の大幅な減少とキャリア緩和率の増加であることを見出した。これらの結果は、光励起ペロブスカイト自己集合体から電荷キャリアの収集を効率化させることに有効なアプローチとなりえるため、高効率太陽電池の開発に重要な知見であるといえる。

以上のように本論文は、非放射性エネルギー移動、電荷キャリアの増倍および長距離移動を可能にする最密充填ハロゲン化鉛ペロブスカイト構造の開発において数々の重要な知見を示している。そして、ヘテロ接合間の非放射エネルギー移動や光子のリサイクルに必要な要素を見出した本研究論文は、太陽電池の高性能化に必要とされる、キャリア収集効率の増幅と効果的利用を可能にする新技術につながるものであると認められる。

審査委員一同は以上の成果を高く評価し、またギムリ氏が研究者として誠実かつ熱心であることを認め、大学院博士課程における研鑽や修得単位などもあわせ、同氏が博士（環境科学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものと判定した。