

鉛ハライドペロブスカイト単結晶の テラヘルツ時間領域反射分光による LO フォノンの決定

LO phonon wavenumbers in lead halide perovskite single crystals

evaluated with Terahertz Time-Domain Reflection Spectroscopy

阪大院基礎工¹, 千葉大理², 京大化研³ ○永井正也¹, 富岡拓也¹, 芦田昌明¹,
保屋野瑞希², 明石涼², 山田泰裕², 阿波連知子³, 金光義彦³

Osaka Univ.¹, Chiba Univ.², Kyoto Univ.³ ○M. Nagai¹, T. Tomioka¹, M. Ashida¹,

M. Hoyano², R. Akashi², Y. Yamada², T. Aharen³, Y. Kanemitsu³

E-mail: mnagai@laser.mp.es.osaka-u.ac.jp

次世代の太陽電池材料として注目されている鉛ハライドペロブスカイト $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbX}_3$ ($\text{X}=\text{I}, \text{Br}, \text{Cl}$) において、キャリアと LO フォノンとの相互作用はその光学/電気特性を理解する上で重要である。LO フォノンはこれまでに低周波ラマン分光や FTIR による赤外分光、発光の温度依存性などで評価されているが、報告された周波数は実験ごとに異なっている。我々はこれまで $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbX}_3$ 単結晶におけるテラヘルツ時間領域反射分光を行い、 $<7 \text{ THz}$ の複素誘電率 ϵ を直接評価した[1]。今回この誘電分散から縦波の素励起を示す $\text{Im}[-1/\epsilon]$ を導出することで[2] LO フォノンの温度依存性を評価したので報告する。

図は 10 K と 300 K での $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ の $\text{Im}[\epsilon]$ (上) および $\text{Im}[-1/\epsilon]$ (下) を示している。室温の $\text{Im}[\epsilon]$ より PbI_6 ケージに由来する TO フォノンが $< 2 \text{ THz}$ に現れ、対応する LO フォノンが 3.9 THz に現れる。しかし低温にすると $\text{Im}[\epsilon]$ のスペクトル上で CH_3NH_3 に起因するモードが $80\text{--}200 \text{ cm}^{-1}$ に現れ[1]、これに応じて $\text{Im}[-1/\epsilon]$ のスペクトル形状が大きく変調する。我々は $\text{Im}[-1/\epsilon]$ のスペクトル解析[3]を行い、実効的 LO フォノンの周波数は温度によって 3.9 THz (16 meV) で変わらないことを見出した。講演では発光スペクトルの温度依存性や他の鉛ハライドペロブスカイトでの結果も併せて報告する。

本研究の一部は、JST-CREST (JPMJCR16N3) の支援で行われた。

[1] 富岡他 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 6p-A501-9 (2017)

[2] Gervais & Piriou, PRB **10**, 1642 (1974).

[3] Hellwarth & Biaggio, PRB, **60**, 299 (1999).

