

青色発光 CsPbBr₃ ペロブスカイト量子ドットの合成と発光特性解析

Synthesis of CsPbBr₃ perovskite quantum dots and their emitting properties

○大泉 理紗¹, 榎本 航之¹, 佐藤 純², 千葉 貴之², 城戸 淳二², 相澤 直矢¹, 夫 勇進¹

¹理化学研究所 創発物性科学研究センター、²山形大学大学院 有機材料システム

Oizumi Risa¹, Kazushi Enomoto¹, Jun Sato², Takayuki Chiba², Junji Kido², Naoya Aizawa¹, Yong-Jin Pu¹

¹Center for Emergent Matter Science (CEMS), RIKEN

² Graduate School of Organic Materials Science, Yamagata University

E-mail: yongjin.pu@riken.jp

【緒言】

ペロブスカイト量子ドット (Perovskite Quantum Dots, PeQD)は、溶液からの塗布成膜が可能であり、半値幅の狭い発光を示すことから LED 材料として注目されている。CsPbX₃ (X=Cl, Br, I)型 PeQD では、X サイトである Br の Cl への置換 (CsPbBr_xCl_{3-x})により緑色から青色へと発光色が変化することが知られている。しかし、ハロゲン交換により作成した青色発光 CsPbBr_xCl_{3-x} は安定性に乏しく容易に組成の変化を招くため発光色の変化が問題となっている。一方で、CsPbBr₃ PeQD では粒径を小さくする事で量子サイズ効果により青色発光が可能であるが、合成の難易度から報告例は多くない。本研究では、ハロゲン交換によらない CsPbBr₃ PeQD での青色発光と、同一組成で異なるサイズを有する CsPbBr₃ PeQD 間でのホスト-ゲスト型エネルギー移動を検証した。

【実験・結果・考察】(略語 ODE: 1-octadecene, OA: oleic acid, OAm: oleylamine)

PbBr₂ および ZnBr₂ を ODE, OA, OAm に溶解させた後に Cs(OA)₂ の ODE 溶液を加え PeQD を合成した。PeQD 粒径は、反応温度および ZnBr₂ の添加量により制御した^[1]。粒径が小さい青色発光 CsPbBr₃ を得るためには、反応温度を低くする必要があるが、PbBr₂ および ZnBr₂ の溶解性が低いため反応が進行しない。溶解性向上のため OA および OAm を精製した。OA は再結晶、OAm は塩酸塩の再結晶および中和後の減圧蒸留により不純物を除去した^[2]。精製試薬を用いた低温反応において青色発光 CsPbBr₃ を得ることができた。XRD 測定において CsPbBr₃ 結晶の回折パターンとの一致を確認した(図 1)^[3]。合成後の精製により、粒径分布の異なる PeQD 試料を得た。粒径分布の狭い試料では、溶液、薄膜ともにスペクトルは変化せず 475 nm、半値幅 23 nm の青色発光を示し、発光量子収率はトルエン溶液中 7%、薄膜 8%であった (図 2 左)。一方で、粒径分布の広い試料では、薄膜において発光半値幅が狭くなり発光量子収率が增大した (溶液 10%、薄膜 54%) (図 2 右)。薄膜においては、粒径が小さい QD から粒径が大きい QD へ粒子間でのエネルギー移動が起きていると考えられる。同一組成でさらに粒径が大きい緑色 PeQD をゲストとして加え、ホスト-ゲスト型エネルギー移動を検証する。

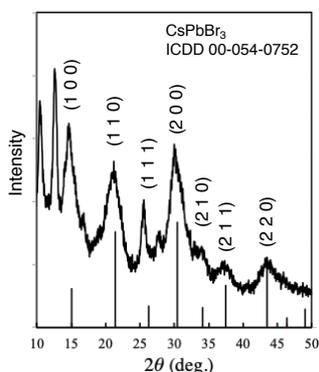


図 1. XRD 測定

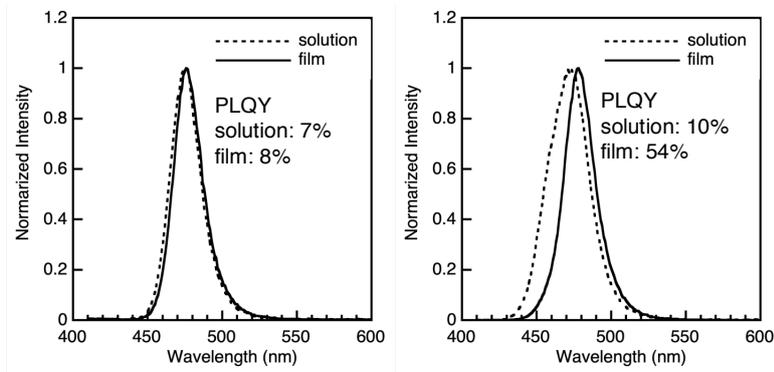


図 2. 蛍光スペクトル (左: 狭い粒径分布, 右: 広い粒径分布)

【参考文献】

[1] Y. Dong et al., *Nano Lett.* **2018**, 18, 3716. [2] D. Baranov et al., *Chem. Mater.* **2019**, 31, 1223. [3] Z. Liang et al., *ACS Appl. Mater. Interf.* **2016**, 8, 28824.