フェムト秒顕微過渡吸収測定による $CH_3NH_3PBr_3$ 微結晶系のホットキャリアダイナミクスの観測

Observation of hot carrier dynamics of $CH_3NH_3PBr_3$ microcrystals by means of femtosecond transient absorption microscopy

徳島大学大学院理工,
(M1)赤木裕一郎，(B)藤田優真，片山哲郎，古部昭広
Tokushima Univ., Graduate School of Advanced Technology and Science,
Yuichiro Akagi, Yuma Fujita, Tetsuro Katayama, Akihiro Furube
E-mail:c612036010@tokushima-u.ac.jp

研究背景

近年、有機無機ハロゲン化鉛ペロブスカイトが高い光電変換及び発光効率から太陽電池、発光ダイオード(LED)、光検出器などの光電子デバイスへの応用化が期待され注目を集めている。$CH_3NH_3PBr_3$ 単結晶は、低閾値で自然放出増幅やレージングなどの非線形発光現象が観測されるが、そのメカニズムはいまだ明らかでない点が多くある。

本研究では、高い発光量子収率を示す $CH_3NH_3PbBr_3$ ペロブスカイト微結晶を作製し、フェムト秒顕微過渡吸収装置を用いてホットキャリアダイナミクスを観測した。

実験方法

酢酸鉛(II)三水和物 100 mg/ml をガラス基板にキャストし、60℃で 30 分乾燥させ結晶[1]を得た。フィルムを臭化メチルアンモニウム溶液(Methylammonium Bromide / Isopropanol 5 mg / mL)に 12 時間漬け、脱気乾燥し、結晶を得た。劣化を防ぐため極力空気に触れさせず窒素下で行った。$CH_3NH_3PbBr_3$ 結晶を顕微鏡下で過渡吸収測定を行った。過渡吸収測定ではフェムト秒再生増幅器(Solistice, Spectra-Physics, 800 nm)からの第二高調波,および非同軸パラメトリック発振器からのシグナル光(540 nm)を励起光、パラメトリック発振光の和周波(480 nm)を観測光とし、光学遅延台を通して顕微鏡(IX71, Olympus)に同軸に導いた。観測光はバンドパスフィルターを通したのち、モノクロ CCD(pike-F032B, Allied Vision Technologies)に導いて信号取得を行った。

結果と考察

作製したペロブスカイト結晶に対して、フェムト秒レーザー光(400 nm)を照射し、モノクロ CCD を用いて発光画像を観測すると、Fig.1(a)に示すように発光し、レーザー強度を上げると、Fig.1(b)に示すように結晶端の一部で強く発光を示した。この発光が非線形発光現象に対応する。次にこの結晶に対して励起波長 400 nm、540 nm で励起させ、キャリア挙動を比較した。過渡吸光度イメージング結果を Fig. 2 に示す。400 nm 励起によるホットキャリア生成時のダイナミクスと比べ、540 nm 励起時ではブリーチ信号が 2 ps 程度で迅速に消失した。

発表ではこれらのキャリア挙動に対する数値計算結果とともにホットキャリアの非線形発光への影響について議論する。

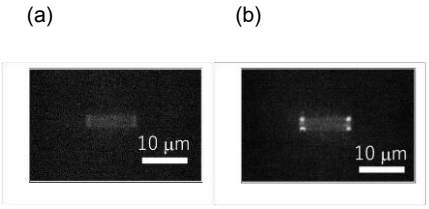


Fig.1 Emission image of $CH_3NH_3PBr_3$below (0.18 μW) (a) and above (0.26 μW) (b) the threshold.

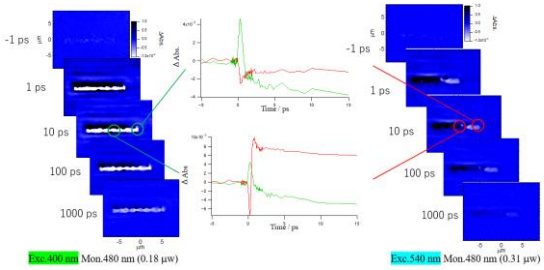


Fig.2 Femtosecnd transient absorbance images and timeprofiles of $CH_3NH_3PBr_3$ microcrystals excited at 400 (green solid line for time profiles) and 540 nm (red solid line for time profiles)

参考文献

[1] X-Y. Zhu *et al. Nature Mater*. 4, 636-643 (2015)

© 2021年 応用物理学会