自己組織化法による CsPbI₃ナノ結晶超格子の作製Ⅱ

Synthesis of 3D-superlattices of CsPbI₃ perovskite nanocrystals by self-assembly method II 名工大院¹, 室工大², ^O(M2) 増田 拓真¹, 濱中 泰¹, 葛谷 俊博², 武田 圭生² Nagoya Inst. Tech.¹, Muroran Inst. Tech.², ^OT. Masuda¹, Y. Hamanaka¹, T. Kuzuya², K. Takeda² E-mail: cmw12003@ict.nitech.ac.jp

【背景】ハロゲン化鉛ペロブスカイト CsPbX₃(X=Cl, Br, I)のナノ結 晶(NC)は、高い発光量子効率、シャープな発光スペクトル、可 視光全域をカバーする波長制御性を示し、新規蛍光材料として期 待されている。近年、CsPbBr₃ NC が高密度周期的に配列した三次 元超格子(3D-SL)において、コヒーレントに結合した NC が共同 的に放出する超蛍光^[1]や NC 間の電子的結合^[2]、NC 間での共鳴エ ネルギー移動(FRET)^[3]などが報告されている。我々は、研究例が 少ない CsPbI₃ NC の三次元超格子の作製と発光特性の調査を進め ている。今回は、電子顕微鏡(TEM、SEM)による NC の粒径解析と NC 配列構造の観察を行った。また発光特性を調査した。

【超格子の作製方法】ホットインジェクション法^[4]により合成した CsPbI₃NC(PLQY≈87%)を、貧/良溶媒を用いた再沈殿法によりサイズ分離した。この NC をトルエンに分散させてシリコン基板上に滴下し、約 6 時間かけてトルエンを揮発させ、自己組織的に配列、凝集させた。

【結果と考察】Fig.1に生成物の SEM 像と光学顕微鏡像(上)、お よび単一NCのTEM像(下)を示す。NC は一辺が平均約14.5 nm の立方体形状であった。光学顕微鏡像には一辺が約1.5 µm の正方 形の粒子が観測される。その SEM 像から、粒子内部では NC が辺 を接して周期的に配列していることがわかる。このような特徴よ り、三次元超格子を形成していることが期待される。Fig.2 に、NC 溶液と単一の超格子の発光スペクトルを示す。溶液と比較すると、 超格子の発光ピークは約6 meV レッドシフトしている。Fig.3 に、 同じ試料の、Fig.2 の矢印のエネルギーで測定した発光減衰曲線を 示す。超格子の減衰は溶液よりもはるかに速い。溶液ではエネルギ ーが異なっても減衰挙動に差がないが、超格子では高エネルギーの 発光減衰がより速い。このような傾向は、半導体 NC 間の励起エネ ルギー移動が生じ非輻射的なキャリア緩和が加速される場合に観 測される結果と定性的に一致している。今後は、超放射が報告され ている低温領域で、発光特性を詳細に調査する予定である。

[1] G. Rainò et al., *Nature* 563, 671 (2018).

[3] E. Penzo et al., ACS Nano 14, 6999 (2020).

[2] C. Zhou et al., *Nat. Commun.* 11, 329 (2020).[4] F. Liu et al., *ACS Nano* 11, 10373 (2017).



Fig.1 SEM image of a single SL of the CsPbI₃ NCs. Insets: Optical microscope image of SLs (upper) and TEM image of NCs (lower).



Fig.2 PL spectra of the CsPbI₃ NCs dispersed in solvent and a single NC-SL at room temperature.



Fig.3 PL decay profiles of CsPbI₃ NCs dispersed in solvent and a single NC-SL at room temperature.