

マイクロキャピラリ法を用いた電流励起型ペロブスカイト WGM レーザーの実現へ向けて



SATテクノロジー・ショーケース2019

■ はじめに

有機金属ハライドペロブスカイトは、その優れた電子的及び光学的特性と、溶液プロセスにより容易に結晶化が可能という利点から、次世代の面積かつ高効率な光電子デバイスの理想的な材料である。これまで太陽電池の分野で注目を浴びてきたペロブスカイトだが、近年では、その発光効率の高さや、発光色を可視光の範囲で調節できるという特長から、発光ダイオードやレーザーの分野でも注目され、光情報通信や医療、バイオセンサー等への応用が期待されている。

ペロブスカイトを電流励起型レーザーに応用するにあたり、サイズが制御された高品質な結晶が得られ、さらに電極形成が可能になる溶液プロセスを開発することは重要な課題である。そこでこれまで我々は、マイクロキャピラリを結晶成長の鑄型として用いる、“マイクロキャピラリ法”(Fig.1(a))を報告している[1]。毛細管現象を用いて $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ 前駆体溶液を石英製のマイクロキャピラリ内に導入し、乾燥させるだけという非常に簡単なプロセスにて、マイクロキャピラリの内径サイズに応じた円柱状の $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ 結晶が得られ(Fig.1(b))、光励起下において、マイクロキャピラリの内径を共振器とする Whispering Gallery Mode (WGM) 由来のレーザー発振を観測した。

■ 研究内容

1. 発光層となる $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ 結晶の均質化

これまでマイクロキャピラリ法では、管内に単結晶が得られるのではなく、いくつかの結晶子で構成される円柱状多結晶が得られていた。このような結晶では、電流励起下において、欠陥やキャリアトラップに起因する発光の明滅現象や、イオン拡散による不安定性が懸念される。そこで我々は、イオン伝導性ポリマーであるポリエチレンオキシド (PEO) に注目し、ペロブスカイト前駆体溶液に添加することにより、欠陥の見られない均質な $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ /PEO 複合体が得られることを見出した。

2. $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ /PEO 複合体の光励起レーザー特性

作製した試料を、YAG ナノ秒パルスレーザーを用いて光励起することにより、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ の励起子発光帯の 540 nm 付近からの狭線化増幅が観測され、マイクロキャピラリの広範囲において、WGM 由来と考えられる発光像が得られた(Fig2.(a))。様々な内径の試料からの高分解発光スペクトルからは、モード間隔の共振器長(マイクロキャ

ピラリの内周)依存性が見られ、マイクロキャピラリの内径を小さくしていくにつれ、通常のレーザーとは異なり、Cavity Quantum Electrodynamics (QED)効果によると思われるレーザー発振閾値の低下が見られた。また、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ 単体試料と比較すると、PEOを添加することによるレーザー発振閾値の低下が見られた。

3. 今後の予定

今後、上述したCavity QED効果の関与を明らかにするために、蛍光寿命の共振器長依存性を明らかにするとともに、Light-emitting Electrochemical Cell (LEC)を作製して電流励起下での発光を観測する。

■ 関連情報等(特許関係、施設)

発表論文

[1] Naho Kurahashi et al., “Whispering Gallery Mode Lasing in Lead Halide Perovskite Crystals Grown in Microcapillary” Appl. Phys. Lett. 113, 011107 (2018)

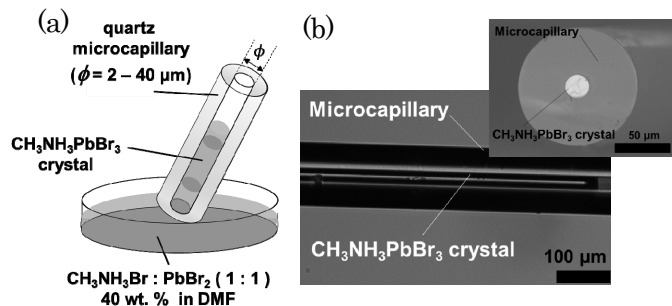


Fig.1. マイクロキャピラリ法の模式図(a). 得られた $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ 円柱状結晶の顕微鏡像と断面 SEM 像(b).

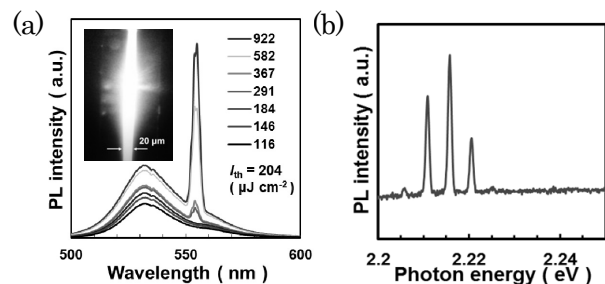


Fig.2 発光スペクトルの励起強度依存性と発光像(a). 高分解発光スペクトル(b) (内径 20 μm 試料).

代表発表者 **棕橋 奈穂 (くらはし なほ)**
 所属 **奈良先端科学技術大学院大学
 物質創成科学研究科 物質創成科学専攻**
 問合せ先 **〒630-0192 奈良県生駒市高山町 8916-5
 E-mail : kurahashi.naho.kf5@ms.naist.jp**

■キーワード: (1) 有機金属ハライドペロブスカイト
 (2) Whispering Gallery Mode (WGM)
 (3) 発光電気化学セル (LECs)

■共同研究者:
 佐々木 史雄 (産総研 電子光技術研究部門)
 柳 久雄 (奈良先端大物質)