

ハロゲン化鉛低次元結晶の励起子・励起子分子 I

東京大学工学部

田中健一郎・高橋敬幸・近藤高志・小澤隆一・浅井圭介

Excitons and Biexcitons in Lead-Halide-Based Low-Dimensional Crystals I

Kenichiro Tanaka, Takayuki Takahashi, Takashi Kondo, Ryuichi Ozawa, and Keisuke Asai

Faculty of Engineering, The University of Tokyo

我々は、低次元ペロブスカイト型結晶群 $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2(\text{CH}_3\text{NH}_3)_{m-1}\text{Pb}_m\text{X}_{3m+1}$ ($\text{X} = \text{I}, \text{Br}; m = 1, 2, 3, \dots, \infty$)における励起子物性の次元依存性に着目して分光測定を行っている。これまでは線形分光や磁気光吸収測定などを行い、最低励起子の光物性と井戸幅との関係に着目して研究を進めてきた。

次元性と励起子物性との関係をより詳細に議論するため、電場変調吸収スペクトル、および2光子吸収測定の測定系を立ち上げ、最低励起子より高エネルギー側の構造について調べた。 $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$ の5 Kにおける吸収スペクトルおよび電場変調吸収スペクトルの測定結果を図に示す。最低励起子の共鳴エネルギー(2.35 eV)とこれまでバンド端であると考えられていたステップ構造のあるエネルギー(2.60 eV)に印加電場の2乗に比例する電場変調信号が得られた。また、2.35 eVに現れた電場変調信号は吸収スペクトルの1階微分形と一致し、2.60 eVに現れた電場変調信号は吸収スペクトルの2階微分形にほぼ一致した。この結果から吸収スペクトルに現れるステップ構造はバンド端によるものではなく、束縛エネルギーの小さな励起子によるものであり、その共鳴エネルギーは2.60 eVであることがわかった。一方、 $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$ の2光子吸収スペクトルにおいては2.61 eV, 2.64 eVにおいて共鳴増大が現れた。電場変調吸収スペクトルに現れた信号のエネルギー位置とあわせて考えると、この共鳴増大は各々ワニア系列における2p, 3p励起子によるものであると考えられる。一般に3p励起子はバンドギャップ近傍に現れるので、この物質のバンドギャップはおおよそ2.64 eVであるといえる。

以上より、 $n = 1, n = 2$ の励起子の束縛エネルギーはそれぞれ290 meV, 40 meVと定めた。求めた $n = 1$ と $n = 2$ の励起子の束縛エネルギーの比7.2 : 1は理想的な2次元ワニア励起子の比9 : 1に近いことから $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$ における励起子は理想的な2次元ワニア励起子であるといえる。

また、最低励起子の束縛エネルギーやボーア半径の井戸幅依存性について統一的に調べるため、 $\text{X} = \text{I}, \text{Br}$ の物質群について同一条件下で系統的な磁気光吸収測定を行った。その結果は上記の電場変調分光・2光子吸収分光の結果と定量的に一致した。現在、測定結果の解析を進めており、これにより、2次元閉じ込めの効果やハロゲン種の違い、井戸・バリアの誘電率の励起子に対する影響などを総括的に取り込んで理解できる道が開けるものと考えている。

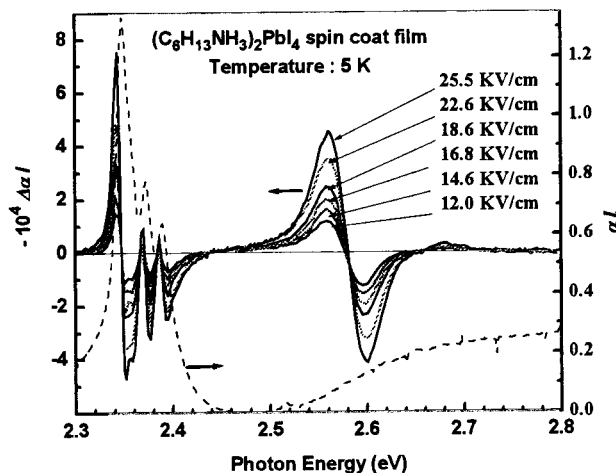


図: $(\text{C}_6\text{H}_{13}\text{NH}_3)_2\text{PbI}_4$ の電場変調吸収スペクトル(実線)および吸収スペクトル(点線)