

“Ekscytonowe projektowanie perowskitowych laserów i diod luminescencyjnych”

W tym projekcie będziemy zajmować się projektowaniem hybrydowych organiczno-nieorganicznych perowskitów, 3D oraz niskowymiarowych, z pożądanymi wartościami parametrów ekscytonowych, dla których pracują lasery (niskie wartości energii wiązania ekscytonu E_b), LED-y (średnie E_b) i baterie słoneczne (nieintencjonalnie, niskie E_b). Drugim założeniem jest poszukiwanie ekscytonów o krótkim czasie życia, w celu zastosowań w szybkiej komunikacji optoelektronicznej. Trzecim, i najbardziej ambitnym, punktem jest skonструowanie lasera pompowanego elektrycznie, gdyż do tej pory stanowi to problem w grupie perowskitów, w przeciwieństwie do szybkiego rozwoju laserów pompowanych optycznie.

Organiczno-nieorganiczne perowskity mają formułę chemiczną ABX_3 , gdzie $A=Cs,Rb,methylammonium(MA),formamidinium(FA)$, $B=Pb,Sn$, and $X=Cl,Br,I$. Perowskity są kryształami jonowymi, z kationami A^+ and B^{2+} oraz anionami X^- . W LED-ach, warstwy perowskitowe są efektywnymi centrami rekombinacji nośników. Są one pomiędzy warstwą transportującą elektrony (typu n) oraz warstwą transportującą dziury (typu p). Lasery muszą mieć lustra (wnęki rezonansowe) aby zwielokrotnić emisję spontaniczną fotonów. Jednakże, perowskity posiadają wysoki współczynnik odbicia światła przy powierzchni zewnętrznej (2.2-2.55) oraz małe kąty krytyczne. To pozwala na zwielokrotnienie emisji światła bez użycia wnęk jeśli struktury są niskowymiarowe. Kompaktowość jest również dobroczynna dla energii wiązania ekscytonów (czyli jasności) oraz dla niskiego prądu progowego. Wiele diod luminescencyjnych i laserów pompowanych optycznie zostało skonструowanych od roku 2014. Oba typy laserów pulsacyjny i ciągły są osiągalne. Jednak pierwszym polem zastosowań tych materiałów były baterie słoneczne, z postępowaniem w ich wydajności od 3.8% w 2009 do 23.7% w 2018 (krzemowe mają wydajność 26.6%).

Przerwa optyczna w perowskitach zależy głównie od halogenku: $MAPbCl_3$ oraz $MAPbBr_3$ mają przerwy prostą 2.97 eV (417 nm) oraz 2.23 eV (556 nm), odpowiednio, natomiast $MAPbI_3$ ma przerwy lekko skośną 1.55-1.7 eV (730-800 nm). Większe przerwy 3.3 eV (376 nm) są dostępne w podwójnych perowskitach $ABi(Ag,Cu)X_6$, za to o wiele mniejsza, <0.5 eV (>2480 nm), jest w Li_3SPbI_3 . Mieszanie perowskitów nie tylko udostępnia cały pośredni zakres (kolor lasera), ale także efektywnie wzmacnia stabilność urządzeń. Dodatkowo, wymiana halogenków może służyć jako sposób wprowadzania struktur niskowymiarowych, czyli zwiększać efektywność przejść promienistych. Do dziś, w perowskitach i ich nanostrukturach zmierzono szeroki zakres energii ekscytonów 43-376 meV, i to nie jest jeszcze ostatnie słowo. My chcemy rozszerzyć powyższe granice.

Nasz plan zakłada zmiany chemiczne (domieszkowanie) i strukturalne (niskowymiarowe perowskity) w celu projektowania materiału tak by promień ekscytonów był mały a energia wiązania wysoka. Ponadto, będziemy przesuwali poziomy energetyczny kationów A w odniesieniu do poziomów “ramy” BX_3 , oczekując lepszego wstrzykiwania nośników do molekuł, w celu skonструowania lasera pompowanego elektrycznie. Pomimo, iż wnęki rezonansowe nie są konieczne w nanostrukturach, to laser polarytonowy (z silnym sprzężeniem ekscyton-foton) jest łatwiejszy do otrzymania przy zastosowaniu dobrych lusterek, gdzie słowo “dobre” oznacza stany brzegowe izolatorów topologicznych. Ta idea jest obiecująca, gdyż w perowskitach znaleziono zarówno stany topologiczne przy domieszkowaniu lub pod ciśnieniem jak i stożki Dirac'a w warstwach, poprzez odpowiednie cięcie kryształu.

Będziemy używać metody funkcjonałów gęstości oraz metod wielociałowych. Pierwsza służy jako źródło parametrów wejściowych dla tych bardziej zaawansowanych. Ekranowanie elektronu poprzez pozostałe elektrony jako odpowiedź na absorpcję światła jest również uwzględnione. Z tymi narzędziami można otrzymać wiele parametrów ekscytonowych, widma optyczne i prąd progowy dla akcji laserowej. Jako uzupełnienie wiedzy o strukturze pasmowej otrzymywanej z funkcjonałów gęstości.