ハロゲン化鉛ペロブスカイトのアンチストークス発光とレーザー冷却

Anti-Stokes Photoluminescence and Laser Cooling of Lead Halide Perovskites

京大化研 ○山田 琢允，阿波連 知子，金光 義彦

ICR, Kyoto Univ., °Takumi Yamada, Tomoko Aharen, Yoshihiko Kanemitsu

E-mail: yamada.takumi.42u@st.kyoto-u.ac.jp

ハロゲン化鉛ペロブスカイト半導体は低コストかつ高効率でフレキシブルな光デバイス材料として活発に研究されている。ペロブスカイト半導体は、直接遷移に起因する鋭い吸収と高効率でストークスシフトのないバンド間発光によって、特に光学的に厚い単結晶では、発光と再吸収を繰り返すフォトンリサイクリングといったユニークな光学現象を引き起こす[1–4]。このような光学現象を深く理解することにより、新しいデバイスの開発も可能となる。

極めて高い発光効率によって引き起こされる光学現象の 1 つに半導体結晶のレーザー冷却がある[5]。励起光のエネルギーよりも高いエネルギーのアンチストークス発光(AS-PL)が効率的に放出されれば、エネルギー収支から格子系は冷却されることになる。レーザー冷却を達成するための条件を正確に議論するには、AS-PL の特性を正確に評価する必要がある。特にペロブスカイトでは、強い電子-フォノン相互作用[6]による AS-PL およびストークス発光(S-PL)とその再吸収やフォトンリサイクリング効果を明らかにすることは重要である。

ペロブスカイト半導体の発光特性を定量的に評価するために、$MAPbI_3$ の光学的に薄い膜と厚い単結晶を作製し、発光励起分光(PLE)測定に基づく解析手法によって、AS-PL および S-PL の励起エネルギー依存性を評価した[7]。薄膜・単結晶ともに AS-PL が観測された。励起強度依存性から、この AS-PL は 1 光子吸収に起因し、フォノンを介したアップコンバージョン過程で発光することが分かった。単結晶の場合、AS-PL と S-PL の強度が釣りあう励起エネルギーE_{eq}は再吸収効果によってレッドシフトした。AS-PL と S-PL の励起エネルギー依存性から求めたアップコンバージョンゲインスペクトルには明確なピークが存在し[7]、この点で最もレーザー冷却効率が高くなることを見出した。

本研究は JST-CREST (JPMJCR16N3)および日本学術振興会 (17J07890)の援助による。

[1] Y. Yamada, T. Yamada *et al*., *J. Am. Chem. Soc*. **137**, 10456–10459 (2015).

[2] T. Yamada *et al*., *Adv. Electron. Mater.* **2**, 1500290 (2016).

[3] T. Yamada *et al*., *Phys. Rev. Applied*. **7**, 014001 (2017).

[4] T. Yamada *et al*., *Phys. Rev. Lett.***120**, 057404 (2018).

[5] S.-T. Ha *et al*., *Nat. Photon*. **10**, 115–121 (2016).

[6] M. Nagai *et al*., *Phys. Rev. Lett.* **121**, 145506 (2018)

[7] T. Yamada *et al*., submitted for publication.

© 2019年 応用物理学会