**顕微発光分光による
CH₃NH₃PbBr₃ バルク結晶のスピンの緩和ダイナミクスの解明
Spin Relaxation Dynamics in CH₃NH₃PbBr₃ Bulk Crystals
Revealed by Optical Microspectroscopy**

千葉大理¹, 京大化研² ○五十嵐 菜々子¹, 音 賢一¹, 金光 義彦², 山田 泰裕¹

Chiba Univ.¹, Kyoto Univ.²

○Nanako Igarashi¹, Kenichi Oto¹, Yoshihiko Kanemitsu², Yasuhiro Yamada¹

E-mail: affa1717@chiba-u.jp

ハロゲン化鉛ペロブスカイト APbX₃ (A = CH₃NH₃⁺, CH(NH₂)₂⁺; X = I⁻, Br⁻, Cl⁻) は、欠陥や不純物の少ない高品質半導体として知られ、その優れた光学特性から太陽電池や LED などの光エレクトロニクスデバイスへの応用が期待されており、盛んに研究が行われている[1,2]。さらに近年、重い鉛に由来した強いスピン - 軌道相互作用とスピンに依存した光学遷移選択則から、これらを活用した半導体光スピントロニクスへの展開が考えられている。実際に、低温での時間分解ファラデー回転測定により、CH₃NH₃PbI₃ において長いスピン寿命の観測が報告されている[3]。

CH₃NH₃PbX₃ バルク結晶は、構造相転移温度以下でサイズが数マイクロメートル程のストライプ状のドメイン構造を示す。したがって、CH₃NH₃PbX₃ 固有のスピン緩和ダイナミクスを観測するには、ドメインサイズよりも小さい励起スポットを用いることが不可欠である。そこで本研究では、時間および偏光分解発光顕微分光により、本質的なスピン緩和ダイナミクスの測定を試みた。また、スピン緩和時間の場所依存性を明らかにするため、円偏光励起下での発光円偏光度スペクトルの空間分布を測定した。

試料には、アンチソルベント法で作製した CH₃NH₃PbBr₃ バルク結晶を用いた。発光の減衰ダイナミクスは、ピコ秒波長可変パルスレーザーと時間相関単一光子計数法で測定した。円偏光励起下での発光を偏光分解することで円偏光度を算出し、そのダイナミクスからスピン緩和時間を見積もった。4 K における円偏光励起下での自由励起子発光は、最大約 20% の高い円偏光度を示し、時間分解発光測定により約 6 ns の長いスピン寿命を見積もった。これは以前に時間分解ファラデー回転分光で報告された値よりも長い。さらに、空間分解測定により円偏光度が強い空間依存性を示すことを明らかにした。この結果は、CH₃NH₃PbBr₃ の本質的なスピン緩和時間は、今回得た値より長い可能性があることを示唆する。講演では、実験結果の詳細について述べるほか、スピン緩和の物理的起源について議論する。

本研究は、JST-CREST (JPMJCR16N3) および科学研究費補助金 (19K03683)、千葉ヨウ素資源イノベーションセンターの支援による。

[1] Y. Yamada, *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **136**, 11610 (2014). [2] Y. Yamada, *et al.*, J. Am. Chem. Soc. **137**, 10456 (2015). [3] P. Odenthal *et al.*, Nat. Phys. **13**, 894–899 (2017).