

2次元系ペロブスカイト単結晶におけるアンチストークス発光と フォトンリサイクリング

Anti-Stokes Photoluminescence and Photon Recycling in Two-Dimensional Perovskite Single Crystals

京大化研 [○](P) 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.2n@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な光デバイス材料として世界的に研究されている。この材料は、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を引き起こす[1–4]。この現象は、薄膜試料における発光スペクトルの膜厚依存性も説明でき[5]、ペロブスカイト半導体の光学特性を議論する上で欠かせないものとなっている。さらに最近では、アンチストークス発光(AS-PL)によるレーザー冷却現象も議論されており[6–8]、フォトンリサイクリングを含めた詳細な解析が必要となっている。

我々はこれまでに MAPbI₃ の薄膜および単結晶に対して発光励起分光(PLE)測定を行い、AS-PL およびストークス発光(S-PL)の励起エネルギー依存性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してきた[7]。さらに、本研究では2次元系ペロブスカイト PEA₂PbI₄ の単結晶試料を作製し、PLE 測定から AS-PL 特性やレーザー冷却可能性について評価し、MAPbI₃ との比較を行った[8]。バンド端近傍の励起エネルギーの範囲では、PEA₂PbI₄ の励起子吸収ピークに対応する励起エネルギーで最も発光ピークエネルギーが高くなり、その他の励起エネルギーではレッドシフトした発光スペクトルが観測された。この振る舞いは励起キャリア分布と再吸収効果の組み合わせで説明できる。AS-PL と S-PL の励起エネルギー依存性からアップコンバージョンゲインスペクトルを求めた。ゲインスペクトルには明確なピークが存在し、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。講演では AS-PL とフォトンリサイクリング効果の競合や、レーザー冷却を実現するための条件について議論する。

本研究は JST-CREST (JPMJCR16N3)の援助による。

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

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

[3] T. Yamada, Y. Yamada, Y. Nakaike, A. Wakamiya, and Y. Kanemitsu, *Phys. Rev. Applied* **7**, 014001 (2017).

[4] T. Yamada, T. Aharen, and Y. Kanemitsu, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 057404 (2018).

[5] T. Yamada, Y. Yamada, and Y. Kanemitsu, *J. Lumin.* **220**, 116987 (2020).

[6] S.-T. Ha, C. Shen, J. Zhang, and Q. Xiong, *Nat. Photon.* **10**, 115–121 (2016).

[7] T. Yamada, T. Aharen, and Y. Kanemitsu, *Phys. Rev. Materials* **3**, 024601 (2019).

[8] T. Yamada, T. Aharen, and Y. Kanemitsu, *J. Chem. Phys.* **151**, 234709 (2019).