

**CsPbBr<sub>3</sub>バルク結晶における  
励起子微細構造の巨大分裂とスピン緩和ダイナミクス  
Giant Splitting of Exciton Fine Structures and Spin Relaxation Dynamics  
in CsPbBr<sub>3</sub> Bulk Crystals**

千葉大理<sup>1</sup>, 京大化研<sup>2</sup>

○五十嵐 菜々子<sup>1</sup>, 兼石 幸弥<sup>1</sup>, 松森 航平<sup>1</sup>, 横田 紘子<sup>1</sup>, 音 賢一<sup>1</sup>, 金光 義彦<sup>2</sup>, 山田 泰裕<sup>1</sup>  
Chiba Univ.<sup>1</sup>, Kyoto Univ.<sup>2</sup>

○Nanako Igarashi<sup>1</sup>, Yukiya Kaneishi<sup>1</sup>, Kohei Matsumori<sup>1</sup>, Hiroko Yokota<sup>1</sup>, Kenichi Oto<sup>1</sup>,  
Yoshihiko Kanemitsu<sup>2</sup>, Yasuhiro Yamada<sup>1</sup>

E-mail: yasuyamada@chiba-u.jp

ハロゲン化鉛ペロブスカイト APbX<sub>3</sub> (A = CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub><sup>+</sup>, CH(NH<sub>2</sub>)<sub>2</sub><sup>+</sup>, Cs<sup>+</sup>; X = I<sup>-</sup>, Br<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>) は、重い鉛に由来した強いスピン - 軌道相互作用とスピんに依存した光学遷移選択則から、半導体光スピントロニクスへの展開が期待されている。実際に、低温においてナノ秒オーダーの長いスピン緩和時間の観測が報告されているが、その緩和メカニズムについては様々な議論がなされている。一方で、ハロゲン化鉛ペロブスカイトは、強誘電/強弾性ドメインのような空間構造を持つことが知られている。我々はこれまで、このような空間構造がスピン緩和機構に及ぼす影響を明らかにするため、円偏光・時間分解顕微分光によって励起子スピン緩和ダイナミクスの空間分布の測定を行ってきた[1]。

本研究では、空間構造がスピン緩和機構に与える影響として三重項励起子の微細構造分裂に着目した。斜方晶（低温）相のナノ粒子やバルク結晶では 0.2~2 meV 程度の微細構造分裂が報告されており[1,2]、このような大きなエネルギー分裂は、極低温においては無視することができない。そこで本研究では、CsPbBr<sub>3</sub>バルク結晶の低温での励起子微細構造を調べ、これを基にして励起子スピン緩和ダイナミクスの起源を明らかにすることを目的とした。

斜方晶相において反射スペクトル測定により励起子共鳴エネルギーの分裂を観測した。その分裂の大きさは 2.4 meV と非常に大きい。偏光依存性から三重項励起子の分裂であることが示唆される。これは、低温における励起子のスピン緩和過程に影響を与える非常に重要な結果である。講演では、励起子微細構造分裂の結果を踏まえた励起子発光の円偏光度の解釈について述べるほか、空間依存性や温度依存性の結果も報告する。

本研究は、JST-CREST (JPMJCR16N3) および科学研究費補助金 (JP19K03683)、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] 五十嵐 菜々子 他, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会 9a-Z04-11 (2020). [2] M. A. Becker, *et al.*, *Nature*, **553**, 189–193 (2018). [3] M. Baranowski, *et al.*, *Nano Lett.*, **19**, 10, 7054–7061 (2019).