

ペロブスカイト膜における低温レーザー発振特性

Low-temperature lasing characteristics of perovskite films

九大・応用化¹, 九大・OPERA², 九大・WPI-I²CNER³

○(M)奈須 龍太郎^{1,2}, 松島 敏則^{1,3}, 安達千波矢¹⁻³

Dept. Appl. Chem.¹, OPERA, Kyushu Univ.², WPI-I²CNER, Kyushu Univ.³

○Ryotaro Nasu^{1,2}, Toshinori Matsushima^{1,3}, Chihaya Adachi¹⁻³

E-mail: r-nasu@opera.kyushu-u.ac.jp, adachi@cstf.kyushu-u.ac.jp

金属ハライドペロブスカイトはLEDの発光材料として大きな注目を集めており、既に有機EL素子に匹敵する20%を超える外部量子効率(EQE)が報告されている[1]。さらに、ペロブスカイト薄膜からは光励起下において低閾値のレーザー発振を示すことが知られている[2]。このような特徴を利用すれば、電流励起型ペロブスカイト半導体レーザーの実現が期待される。そこで本研究では、ペロブスカイト半導体レーザーの実現に向けて、励起状態の失活や低温下におけるレーザー発振特性を検討した。本研究では、低いレーザー閾値を目指し、ナフチルメチルアミン臭化水素酸塩、ホルムアミジニウム臭化水素酸塩、臭化鉛から構成される擬2次元型ペロブスカイト薄膜を用いた[3]。

一般に、ペロブスカイト薄膜は、光パルス励起下において他の励起状態との相互作用により励起状態失活が生じ、発光寿命の著しい短寿命化が観測される。ところが、ナフチルメチルアミン系の擬2次元型ペロブスカイト薄膜では、発光の短寿命化は観測されなかった。また、高電流密度領域におけるペロブスカイトLEDで観測されるEQE減少の原因の一つはオージェ再結合であることが特定されている[4]。オージェ再結合はキャリアとの相互作用による励起状態の失活であるが、ナフチルメチルアミン系の擬2次元型ペロブスカイト薄膜に外部電極によりキャリアを注入してもPL強度の減衰は観測されなかった。これらの結果は、本研究で用いたペロブスカイト薄膜では、他の励起状態やキャリアとの相互作用による励起状態の失活は生じず、電流励起レーザーの活性層として極めて有望であることが確認された。

現在、電流励起によるペロブスカイト半導体レーザーを実現するためには、高いレーザー発振閾値が課題である。そこで、低温駆動による閾値低下の可能性について検討した。まず、比較的レーザー発振が容易な光励起での検討を行い、光共振器には低閾値化が期待される円形の2次元DFB型光共振器[5]を用いた(Fig. 1)。室温における閾値($\sim 2 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ @ 298 K)と比較すると、73 Kではレーザー発振閾値が $\sim 0.01 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ まで低下し、約1/200に減少することを見出した(Fig. 2)。これは、低温では熱活性化型の欠陥が形成されにくいためと考えられる。また、低温下におけるペロブスカイトLEDの発光特性について検討したところ、EQEが約3倍に向上した。これらの結果から、低温下では電流励起型レーザー発振が容易になると期待される。

[1] X. Weidong, *et al.*, *Nat. Photon.* **13**, 418, (2019). [2] D. Felix, *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* **5**, 1421, (2014). [3] C. Qin, *et al.*, *Nat. Photon.* **14**, 70, (2020). [4] Li, Y., *et al.*, *Angew. Chem., Int. Ed.* **59**, 14292, (2020). [5] C. A. M. Senevirathne *et al.*, *ACS Photon.* **8**, 1324, (2021).

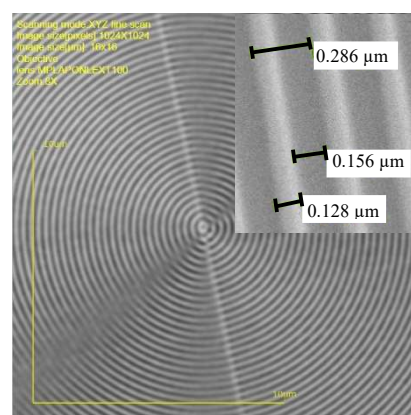


Fig. 1. Round-shaped optical resonator.

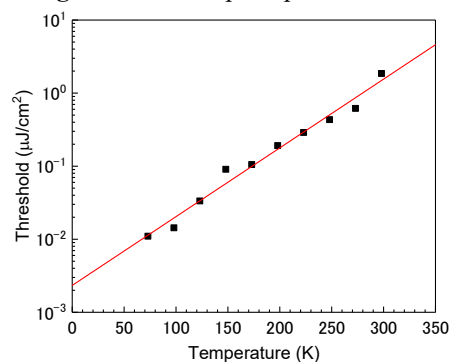


Fig. 2. Temperature-dependent lasing thresholds under optical pumping.