

新たな光機能や光物性の発現・利活用を基軸とする
次世代フォトニクスの中盤技術
平成 28 年度採択研究代表者

H29 年度 実績報告書

金光 義彦

国立大学法人京都大学化学研究所
教授

ハロゲン化金属ペロブスカイトを中盤としたフレキシブルフォトニクス技術の開発

§ 1. 研究実施体制

(1)「金光義彦」グループ

- ① 研究代表者: 金光 義彦 (京都大学化学研究所、教授)
- ② 研究項目
 - ・高品質単結晶・薄膜・ナノ構造の作製と基礎光学・電気特性の解明
 - ・光物性・光機能を中盤としたフォトニックデバイスの開発と特性評価

(2)「山田」グループ

- ① 主たる共同研究者: 山田 泰裕 (千葉大学大学院理学研究院、准教授)
- ② 研究項目
 - ・高品質単結晶・薄膜・ナノ構造の作製と基礎光学・電気特性の解明
 - ・光物性・光機能を中盤としたフォトニックデバイスの開発と特性評価

§ 2. 研究実施の概要

本研究では、結晶成長が容易でしかも非常に高品質な単結晶・薄膜が作製できる新しい半導体材料であるハロゲン化金属ペロブスカイトに注目し、それを基盤としたフレキシブルフォトニクス技術の開発を目指す。半導体材料としての基礎物性を明らかにし、発光・受光素子、レーザー光源、光変調素子などのデバイス材料としての新機能・高性能を引き出し、単一物質による新しいデバイス研究に取り組む。昨年度に引き続き本年度では、(i)高品質単結晶・薄膜・ナノ構造の作製と基礎光学・電気特性の解明と(ii)光物性・光機能を基盤としたフォトニックデバイスの開発と特性評価に関する研究を推進した。

2年目の平成29年度では、研究初年度に進めてきたレーザーをベースとした時間分解発光・過渡吸収分光計測システムおよび単一顕微発光分光装置の拡張・改良を進め、単結晶とナノ粒子の基礎光物性の研究を行った。 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbX}_3$ ($\text{X}=\text{I}, \text{Br}, \text{Cl}$)の高品質単結晶を作製し、バンド間発光に加え励起子発光のフォトンリサイクリング(発光とその再吸収)を明らかにした。特に、青色発光材料として期待される $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ の1光子および2光子吸収スペクトルを求め、バンドギャップおよび励起子束縛エネルギーを精度高く決定した。Bi置換によるキャリアドーピングによりキャリア寿命を制御し、キャリア拡散やフォトンリサイクリングが発光スペクトルに及ぼす効果を明らかにした。さらに、単結晶のフォトリラクティブ効果を発見し、ハロゲン化金属ペロブスカイトが光位相シフターとして機能し、レーザー光を任意の偏光に変化させることに成功した。ハロゲン化金属ペロブスカイトの発光・受光・光変調デバイスとして活用する上で必要な物性値を求めた。

CsPbX_3 および $\text{HC}(\text{NH}_2)_2\text{PbX}_3$ のペロブスカイトナノ粒子の作製とその高品質化に取り組み、ハロゲン置換およびナノ粒子のサイズ制御によりバンドギャップエネルギーの制御を行った。ナノ粒子の基礎特性を明らかにするための単一ナノ粒子・単一フォトン分光システムの構築と解析方法を開発した。このシステムを用いて、ナノ粒子表面を処理することにより、発光効率の向上と明滅現象の改善が可能であることを示した。近赤外波長領域で応答するナノ粒子光検出器や太陽電池の高効率化に寄与できるマルチエキシトン状態を解析できる位相ロックパルス過渡吸収分光法を開発し、エキシトン・バイエキシトン・トリエキシトンの精密計測に取り組んだ。

さらに、ゲート電圧によるON/OFF制御が可能なFET構造デバイスの開発を行った。高品質単結晶におけるキャリア移動度として、有機EL材料における最高値に匹敵もしくは上回る $48\text{ cm}^2/\text{Vs}$ を実現した。さらに、走査型プローブ顕微鏡(SPM)を導入して光照射下における局所伝導測定システムを構築した。電気伝導および光学計測の計測により、ハロゲン化金属ペロブスカイトのキャリア特性の研究を行った。

今年度の主な発表論文(3編)を以下に示す。

- Y. Yamada, M. Hoyano, R. Akashi, K. Oto, and Y. Kanemitsu, Impact of Chemical Doping on Optical Responses in Bismuth-doped $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbBr}_3$ Single Crystals: Carrier Lifetime and Photon Recycling. *J. Phys. Chem. Lett.* 8, 5798-5803 (2017).
- N. Yarita, H. Tahara, M. Saruyama, T. Kawawaki, R. Sato, T. Teranishi, and Y. Kanemitsu, Impact of Postsynthetic Surface Modification on Photoluminescence Intermittency in Formamidinium Lead Bromide Perovskite Nanocrystals. *J. Phys.*

Chem. Lett. 8, 6041-6047 (2017).

- T. Yamada, T. Aharen, and Y. Kanemitsu, Near-Band-Edge Optical Responses of $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ Single Crystals: Photon Recycling of Excitonic Luminescence. Phys. Rev. Lett. 120, 057404 (2018).