

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
2016年度採択研究代表者

2019年度 実績報告書

金光 義彦

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. 研究成果の概要

本研究では、簡便な溶液法により高品質な結晶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ンクス技術の開発を目指す。安価で大量生産可能、さらに加工性や光機能に優れた高品質半導体は、実用デバイス材料としての高いポテンシャルを有しており、ハロゲン化金属ペロブスカイトをベースとした新しいフォニックデバイスの開発研究に取り組む。半導体材料としての基礎光物性・光機能を明らかにし、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・高性能を引き出す。フォニックデバイス材料としてのペロブスカイト半導体の光物性・光機能の本質を理解し、溶液塗布で作製可能という大きなアドバンテージを活かしたデバイスの作製とその評価に取り組んだ。

試料作製技術の開発・改良に加えて、時間分解レーザー分光システム、単一顕微分光システム、走査型プローブ顕微鏡などの計測・評価系の開発・改良を進め、ペロブスカイト半導体の光物性・光機能の研究を進めた。中心物質として $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbX}_3$ を取り上げ、ハロゲン ($\text{X} = \text{I}, \text{Br}, \text{Cl}$) またはカチオン (CH_3NH_3^+ , $(\text{NH}_2)_2\text{CH}^+$, Cs^+) を置換した様々なペロブスカイトの単結晶およびナノ粒子の作製とその高品質化を行い、基礎光電特性の解明を行った。絶対発光量子効率測定によって無輻射再結合過程を定量的に評価することで、発光効率を低下させる要因を推測し、実際に発光効率の高い高品質単結晶の作製を実現した。さらに、ハロゲン化金属ペロブスカイトのキャリア輸送特性を明らかにするために、光照射下でのホール測定を行い、電子と正孔の移動度を個別に評価することに成功した。見積もられた移動度は従来よりも数倍大きく、この物質のキャリア輸送に関する高いポテンシャルを示す結果を得た。磁気光学測定によってキャリア有効質量を測定し、ポーラロン効果の定量的な評価およびその起源についての検討を行った。

これまでの発光デバイスおよび太陽電池の特性評価に加え、新しく非線形光学特性と熱光学特性の研究解析を進めた。光干渉計や Z スキャン法などを用いて、光学定数の温度依存性や非線形光学係数の波長依存性などの精密計測に成功した。特に、青色波長まで透明なワイドバンドギャップ半導体 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbCl}_3$ の応用に必要な光学特性を詳しく研究した。さらに、ディスプレイ用の発光体さらにはナノ粒子単一フォトン光源などへの新しい展開を見据えて、層状ペロブスカイトや低次元ハロゲン化物などの新しいタイプのペロブスカイトとその関連物質の作製と特性評価を行った。材料の安定化と発光効率の向上に取り組み、実用化のための技術要素として重要な非鉛材料の研究開発を進めた。さらに、走査型プローブ顕微鏡 (SPM) 計測を向けた微細加工 (ナノリソグラフィ) 技術の研究を行い、加工精度の向上を行った。また、加工プロセスの検討から、ハロゲン化金属ペロブスカイトの劣化機構についても検討を行った。

【代表的な原著論文】

H. Hirori, P. Xia, Y. Shinohara, T. Otake, Y. Sanari, H. Tahara, N. Ishii, J. Itatani, K. L. Ishikawa, T. Aharen, M. Ozaki, A. Wakamiya, and Y. Kanemitsu, “High-order harmonic generation from hybrid organic-inorganic perovskite thin films”, *APL Mater.* vol. 7, 041107, 2019.

T. Handa, H. Tahara, T. Aharen, and Y. Kanemitsu, “Large negative thermo-optic coefficients of a lead halide perovskite”, *Sci. Adv.* vol. 5, eaax0786, 2019.

T. Yamada, T. Aharen, and Y. Kanemitsu, “Upconverted excitonic photoluminescence from a two-dimensional lead-halide perovskite”, *J. Chem. Phys.* Vol. 151, 234709, 2019.

§ 2. 研究実施体制

(1)「金光」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
 1. 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
 2. 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
 3. 実用化のための技術開発

(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
 1. 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
 2. 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
 3. 実用化のための技術開発