

# 光ナノ量子物性科学研究領域における最近の研究

## 光ナノ量子物性科学

当研究領域では、様々な半導体材料からなるナノ粒子、薄膜、バルク結晶の新しい光物性・機能を引き出し、ナノサイエンスの新領域を開拓することを目指している。本稿では、当研究領域での最近の研究成果の一部について紹介する。

### 1. 楕円偏光レーザー照射下ペロブスカイトナノ結晶からの高次高調波における干渉効果の解明

近年、固体からの高次高調波発生は大きな注目を集め、その発生メカニズムを解明するためバルクや単原子層材料など様々な形態の材料で精力的な研究が行われてきた。しかし、半導体ナノ粒子を対象とした研究は行われてこなかった。そこで、我々はバンドギャップ内の欠陥密度が極めて低く、固有の電子状態がその光学応答に顕著に現れるハロゲン化鉛ペロブスカイトナノ粒子に注目した。溶液処理したペロブスカイト  $\text{CsPbBr}_3$  ナノ結晶膜に対し強い中赤外レーザー光を照射し、発生した高次高調波を計測した。その結果、バンドギャップエネルギーをはるかに超え、紫外光領域に到達する 13 次までの高調波を観測した。さらに、楕円偏光のレーザー光を用いて、5 次高調波の強度に対する試料構造の影響を解析した。その結果、膜中のナノ結晶の配向がランダムであると、ナノ結晶から放出される位相の異なる高調波が干渉し、高調波の強度が低下することを見出した。ナノ結晶膜からの高次高調波の観測は、励起光楕円率を変えるだけで調整可能な強度変調器の開発に道を開くものである。

### 2. ハロゲン化鉛ペロブスカイトナノ粒子の粒子サイズに依存した励起子格子相互作用の解明

ハロゲン化鉛ペロブスカイトナノ粒子は 90% を超える高い量子発光効率や可視域でのバンドギャップ可変性などのすぐれた特徴をもつため、新たな発光デバイス材料として注目を集めている。さらに近年、ペロブスカイトナノ粒子は長い励起子位相緩和時間をもち、単一光子光源に適した材料であることが報告された。励起子位相緩和時間は励起子格子相互作用の影響を大きく受けるため、その強度を計測することが重要である。そこで本研究では、ペロブスカイトナノ粒子  $\text{HC}(\text{NH}_2)_2\text{PbBr}_3$  の発光スペクトルを、単一粒子顕微分光法を用いて計測した。その結果、励起子発光ピークの低エネルギー側に 4 つのピークが観測され、その起源が 2 つの LO フォノンレプリカ発光と荷電励起子発光、そして励起子分子発光であることを明らかにした。荷電励起子および励起子分子の束縛エネルギーは粒子サイズの減少に伴い増大する一方で、LO フォノンエネルギーは粒子サイズ依存性を示さなかった。さらに、励起子格子相互作用強度 (Huang-Rhys 因子) は粒子サイズの減少に伴い増大することを見出し、その起源は誘電閉じ込め効果および粒子の形状効果によるものであることを明らかにした。

### 3. テラヘルツ電磁波の真空量子揺らぎと格子振動の超強結合状態の実現

光と物質が強く相互作用すると、元の状態とは異なる混成状態が形成されるが、この光と物質の結合強度が増加すると、超強結合と呼ばれる領域に達する。最近、真空中の光電場をフォノンと超強結合させ、物性を操作する新しい手法が提案され、大きな注目を集めている。しかし、フォノンモードの双極子モーメントが小さいために、超強結合をフォノン系で実現することは容易ではない。この結合強度は光電場の振幅と、双極子のモーメントや密度に依存するが、これまでの研究では主に双極子

の役割のみが注目されていた。今回我々は、真空電場を増強することで結合強度を高める方法を見出した。試料は、スプリットリング共振器（SRR）のキャビティ上に、テラヘルツ周波数にフォノンモード共鳴を持つペロブスカイト半導体  $\text{MAPbI}_3$  をスピンコートすることで作製した。テラヘルツ時間領域分光の実験結果とシミュレーションの比較から、SRR のギャップがナノサイズまで小さくなると、閉じ込め効果によって真空電場が増強され、これが双極子数の減少を凌駕することで、光とフォノンの超強結合が実現されることを示した。