

## 有機無機ハイブリッドペロブスカイトからの高次高調波発生と起源

### Observation and generation mechanism of high-order harmonics from hybrid organic-inorganic perovskites

京大化研<sup>1</sup>, 東大院工<sup>2</sup>, 東大物性研<sup>3</sup>, 量研機構<sup>4</sup>

○佐成晏之<sup>1</sup>, 廣理英基<sup>1</sup>, 阿波連知子<sup>1</sup>, 田原弘量<sup>1</sup>, 篠原康<sup>2</sup>, 夏沛宇<sup>3</sup>,

乙部智仁<sup>4</sup>, 石井順久<sup>3</sup>, 板谷治郎<sup>3</sup>, 石川顕一<sup>2</sup>, 金光義彦<sup>1</sup>

ICR, Kyoto Univ.<sup>1</sup>, Dep. Eng., Tokyo Univ.<sup>2</sup>, ISSP, Tokyo Univ.<sup>3</sup>, QST<sup>4</sup>

°Y. Sanari<sup>1</sup>, H. Hirori<sup>1</sup>, T. Aharen<sup>1</sup>, H. Tahara<sup>1</sup>, Y. Shinohara<sup>2</sup>, P. Xia<sup>3</sup>,

T. Otake<sup>4</sup>, N. Ishi<sup>3</sup>, J. Itatani<sup>3</sup>, K. Ishikawa<sup>2</sup>, Y. Kanemitsu<sup>1</sup>

E-mail: sanari.yasuyuki.86m@st.kyoto-u.ac.jp

近年、高強度のパルスレーザーの固体試料への照射によって XUV 波長領域に達する高次高調波発生(HHG)が観測され、原子や分子とは異なる固体特有のメカニズムが提案されるなど精力的な研究が行われている[1,2]。高い強度の光電場によってトンネル励起された電子や正孔が強く駆動されて生じる非線形電流を起源として[1-3]、入力したフォトンエネルギーの整数倍の高いエネルギーを持つ光が発生するが、その詳細なメカニズム解明が求められている。本研究では、有機無機ハイブリッドペロブスカイト半導体における HHG に関する詳細な研究を行った。この物質は、簡便に作製できしかも優れた光電特性を示すために、太陽電池をはじめとして様々な光電デバイスとして利用が考えられている[4]。さらに、ペロブスカイト構造を反映した結晶異方性を持つために、キャリア生成や加速が HHG に与える影響を調べるうえで格好の材料と言える。バンド構造を考慮した理論計算との比較は HHG の機構の精密な理解を与えると期待される。

本研究では、三種類のペロブスカイト半導体 MAPbX<sub>3</sub> (MA=CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>, X=Cl, Br, I) の薄膜とバルク単結晶を試料として用いた。最大ピーク電場が 10MV/cm の中赤外レーザーパルス (0.35eV) を照射し、最大 13 次にわたる高次高調波の発生を観測した[5]。さらに、時間依存密度行列法を用いて第一原理的にバンド構造を全て考慮した数値計算を行い、実験とよい一致を得られた。その結果、ペロブスカイト半導体における高調波の起源は主に価電子帯を運動する正孔によるバンド内電流であることを見出した。単結晶における高調波の発生効率の角度依存性は、トンネルするキャリア数を反映したものであることを明らかにした。

本研究は、科研費特別推進研究(19H05465)、JST-CREST(JPMJCR16N3)、村田学術振興財団の援助による。

[1] S. Ghimire et al., Nature Phys. **7**, 138 (2011).

[2] O. Schubert et al., Nature Photon. **8**, 119 (2014).

[3] K. Kaneshima et al., Phys. Rev. Lett. **120**, 243903 (2018).

[4] Y. Kanemitsu and T. Handa, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 090101 (2018).

[5] H. Hirori et al., APL Mater. **7**, 041107 (2019).