

**CsPbBr₃ ペロブスカイトナノ粒子の
大きなスピン軌道相互作用に起因した超高速非線形光学応答
Strong spin-orbit coupling induces ultrafast nonlinear optical responses
in CsPbBr₃ perovskite nanocrystals**

京大化研 °湯本 郷, 廣理 英基, 関口 文哉, 佐藤 良太, 猿山 雅亮, 寺西 利治, 金光 義彦
ICR, Kyoto Univ.

°Go Yumoto, Hideki Hirori, Fumiya Sekiguchi, Ryota Sato, Masaki Saruyama,
Toshiharu Teranishi and Yoshihiko Kanemitsu
E-mail: yumoto.go.7m@kyoto-u.ac.jp

ハロゲン化鉛ペロブスカイトは、優れた光学特性と溶液合成による簡便な作製法のため、次世代光電子デバイス応用などに向けて大きな注目を集めている[1]。近年、ハロゲン化鉛ペロブスカイトのバンド端遷移双極子モーメントが大きな値を持つことが明らかになり[2]、強い光・物質相互作用に起因する物性研究の舞台としても注目を集めている[3,4]。また、鉛原子に由来する大きなスピン軌道相互作用によって、伝導帯状態が~1 eV の間隔で分裂したバンド構造を持っている[5]。そのため、この特異な多準位電子状態を利用することによって、他の半導体ナノ構造とは異なる新奇な非線形光学応答が期待できる。しかし、スピン軌道分裂した電子状態は同じ対称性を持つため、高エネルギー伝導帯状態が非線形光学応答に寄与するかは明らかではなかった。

そこで我々は、ハロゲン化鉛ペロブスカイト CsPbBr₃ ナノ粒子に対して円偏光ポンプ・プローブ分光測定を室温で行った。可視ポンプ光においては、二準位系における optical Stark 効果によってCsPbBr₃ナノ粒子のバンド端エキシトン準位が高エネルギー側にシフトする様子が観測された。一方で、近赤外ポンプ光を照射したところ、二準位系における optical Stark 効果から予想される振る舞いとは異なり、バンド端エキシトン準位が近赤外、特に光通信帯波長のポンプ光で再び大きく高エネルギー側にシフトすることを発見した。さらに、この近赤外領域における特異なエネルギーシフト増大の起源が、スピン軌道分裂した伝導帯準位を考慮した三準位系における Autler-Townes 効果であることを明らかにした[6]。この結果は、近赤外光による効率的な室温・超高速光スイッチングが実現可能であることを示唆している。講演ではその詳細について報告する。

本研究は科研費・特別推進研究 (Grant no. JP19H05465)の援助による。

- [1] Y. Kanemitsu and T. Handa, Jpn. J. Appl. Phys. 57, 090101 (2018).
- [2] D. Giovanni et al., Sci. Adv. 2, e1600477 (2016); Y. Yang et al., Nat. Commun. 7, 12613 (2016).
- [3] G. Yumoto et al., J. Phys. Chem. Lett. 9, 2222–2228 (2018).
- [4] H. Hirori et al., APL Materials 7, 041107 (2019); Y. Sanari et al., Phys. Rev. B 102, 041125(R) (2020); K. Nakagawa et al., Phys. Rev. Mater. 5, 016001 (2021).
- [5] K. Ohara et al., Phys. Rev. B 103, L041201 (2021); K. Ohara et al., Phys. Rev. Mater. 3, 111601(R) (2019).
- [6] G. Yumoto et al., Nat. Commun. 12, 3026 (2021).