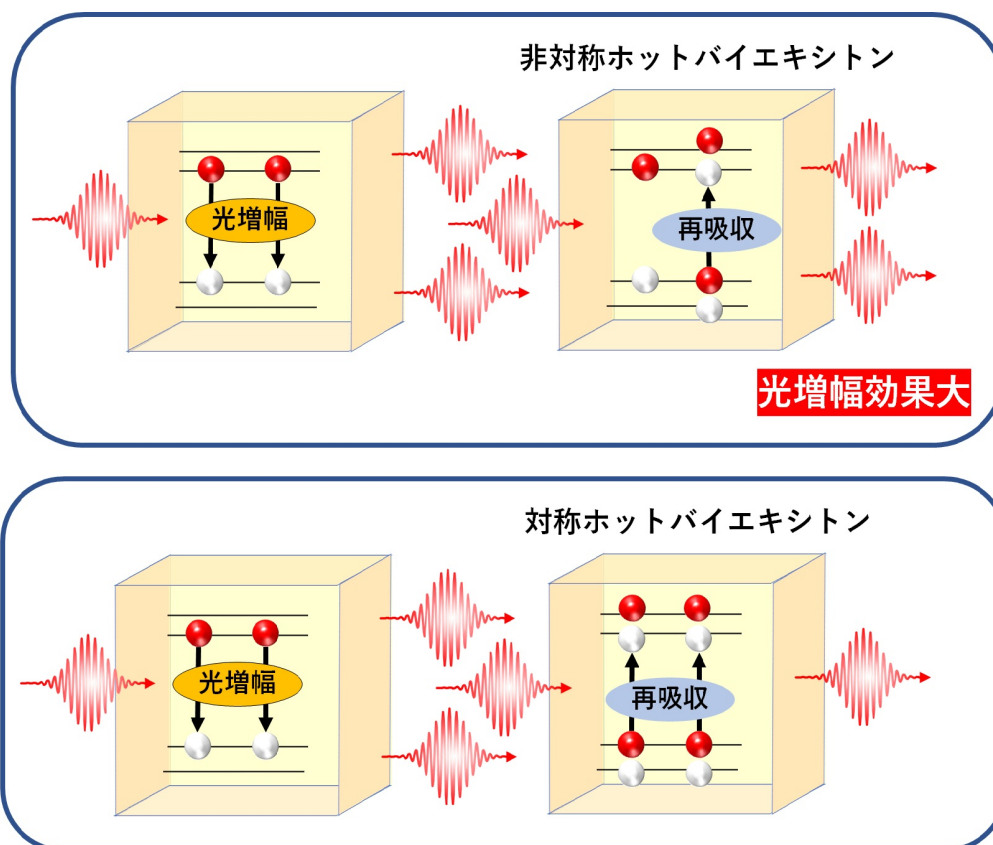


## 半導体ナノ粒子の光学利得の向上に成功 —励起状態の制御と機能開拓への新たなアプローチ—

### 概要

京都大学化学研究所 金光義彦 教授、田原弘量 同助教、眉山悦企 理学研究科修士課程学生らの研究グループは、半導体ナノ粒子の励起状態をフェムト秒光パルス対で制御することで、光学利得閾値を低減する新しい方法を開発しました。光学利得閾値はレーザーの性能を表す指標の1つであり、この値が小さいほど少ないエネルギーで光を増幅でき、高い効率のレーザーが実現できることを意味します。半導体ナノ粒子による光増幅においては、高エネルギーの電子と正孔からなるホットエキシトンや対称的なホットバイエキシトンと呼ばれる励起状態にあるナノ粒子が、発生した光を再吸収しナノ粒子集合体での光増幅の効果を弱める、すなわち光学利得閾値を上昇させてしまうことが問題となっていました。本研究グループはパルス対でナノ粒子集団を励起することで、増幅された光の再吸収が少ない非対称なホットバイエキシトン状態を選択的に生成し、励起直後のナノ粒子集団での光学利得閾値の低下を実現しました。この成果は、短パルスレーザーをはじめとする、半導体ナノ粒子を用いた新たな光源開発へつながると期待されます。

本研究成果は、2020年4月28日に米国の国際学術誌「Nano Letters」のオンライン版に掲載されました。



図：半導体ナノ粒子集団において、非対称なエネルギー状態からなるホットバイエキシトンを生成することで、ナノ粒子集合体から効率高く光が増幅されることを実現。

## 1. 背景

半導体ナノ粒子は、数ナノメートルという非常に小さなサイズの結晶であり、量子力学的な効果に基づく発光効率の高さや発光波長の可変性といった特長を持っています。なかでもハロゲン化鉛ペロブスカイト半導体のナノ粒子は、簡便な作製手法で非常に高い発光効率を実現できるため、安価で高効率なレーザー材料として注目されています。これまで、ナノ粒子構造の制御や電子のドーピングなど様々な手法によって半導体ナノ粒子のレーザー材料としての機能を向上する研究が行われてきました。しかし、応用に向けて未解決の課題も多く、そのうちの1つに、発生した光を弱めてしまう再吸収過程があります。ナノ粒子集団において高エネルギーの電子と正孔のペア（ホットエキシトン）を持つナノ粒子が存在するとこの再吸収が起これ、光増幅効果が小さくなるのが問題となっていました。

## 2. 研究手法・成果

本研究グループは、ハロゲン化鉛ペロブスカイト  $\text{CsPbI}_3$  のナノ粒子集団を単パルスもしくは光パルス対で励起し、さらに別の弱い光パルスを照射することで光増幅や光学利得閾値を測定しました。パルス対の時間間隔を変化させることで、ナノ粒子集団において、ホットエキシトン、対称ホットバイエキシトン（エネルギーの等しい2個のホットエキシトン）そして非対称ホットバイエキシトン（1個のホットエキシトンと1個のグラウンドエキシトン（低エネルギーの電子と正孔のペア））など様々な状態にあるナノ粒子の割合を制御することが可能となります。研究グループは各状態の割合の変化に伴って光学利得閾値がどのように変化するかを調べました。その結果、パルス対の間隔を数十ピコ秒あけて照射した場合、励起直後で光学利得閾値が低下することを発見しました。これは、時間遅延を付けたパルス対を照射することで、増幅した光を再吸収する効果が小さな非対称ホットバイエキシトン状態を効率的かつ選択的に生成し、増幅された光のうちナノ粒子集団内での再吸収量が減少するためと考えられます。

## 3. 波及効果、今後の予定

ペロブスカイトナノ粒子は作製の簡便さと発光効率の高さから、高効率なLEDやレーザーなど新しい光源としての応用が期待されています。本研究におけるフェムト秒からピコ秒の超高速領域での励起状態の操作や光学利得の制御は、短パルスレーザーなどペロブスカイトナノ粒子を用いた新しい光デバイス応用につながると期待されます。

## 4. 研究プロジェクトについて

本研究は、下記の助成金の支援を受けて行われました。

- JSPS 科研費・特別推進研究（19H05465）、若手研究（18K13481）
- 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 CREST（JPMJCR16N3）

### <研究者のコメント>

これまで、半導体ナノ粒子のレーザー応用に向けて材料合成や構造設計の立場からナノ粒子の性能を向上する研究が多く行われてきました。本研究は、光でのナノ粒子の励起状態の制御による性能向上を目指したもので、これまでに行われてきた研究と組み合わせることで、半導体ナノ粒子のさらなる高機能化につながることを期待しています。今後も、半導体ナノ粒子の光物理の解明や光機能の開拓を目指して研究を進めていきます。

### <論文タイトルと著者>

タイトル：Reduction of Optical Gain Threshold in CsPbI<sub>3</sub> Nanocrystals Achieved by Generation of Asymmetric Hot-Biexcitons (非対称ホットバイエキシトンの生成によるCsPbI<sub>3</sub>ナノ粒子における光学利得閾値の低下)

著者：Etsuki Kobiyama, Hirokazu Tahara, Ryota Sato, Masaki Saruyama, Toshiharu Teranishi, and Yoshihiko Kanemitsu

掲載誌：Nano Letters DOI：10.1021/acs.nanolett.0c01079