

強固で安定したポラリトン状態の室温凝縮を実現
～レーザや太陽電池の効率化、低消費電力での電子デバイス開発に寄与～

1. 発表者：

京都工芸繊維大学電気電子工学系 教授 山下兼一
京都工芸繊維大学電気電子工学系 助教 高橋駿

2. 発表のポイント：

- ◆光と物質間のハイブリッドな量子状態として知られる「ポラリトン状態^{※1}」が、全無機ペロブスカイト^{※2}と呼ばれる材料の使用により、全く新しい物理形態で形成されており、室温凝縮できることを示した。
- ◆ハイブリッド状態をより強固で安定して形成でき、しかも室温で凝縮可能という点で従来の無機半導体もしくは有機半導体を用いた技術と異なり、新たな発見となる。
- ◆本発見はレーザや太陽電池の高効率化のための基礎物理となり得るものであり、低消費電力での量子デバイス開発の発展にも寄与する。

3. 発表概要：

京都工芸繊維大学電気電子工学系山下兼一教授、高橋駿助教らは、光と物質間のハイブリッドな量子状態として知られるポラリトン状態が、全無機ペロブスカイトと呼ばれる材料の使用により、新しい形態で形成されることを示した。従来の無機半導体もしくは有機半導体を用いた技術では、高励起下ではポラリトン状態が崩れやすい、もしくはエネルギー凝縮が起こりにくいといった問題点があった。本研究の技術では、より強固で安定にポラリトン状態を形成でき、しかも室温で凝縮可能という点で新たな発見となる。本発見はポラリトン状態の物性解明と制御技術の開拓に大きく貢献するものであり、レーザや太陽電池の高効率化や低消費電力での量子デバイス開発の発展に寄与する。

本研究成果は、2022年1月2日(日本時間)に「Light: Science & Applications」オンライン版に掲載された。

4. 発表内容：

研究の背景

光の波長サイズの狭い領域に光波を閉じ込める微細構造である光微小共振器を、半導体材料を用いて作製することにより、半導体中の電子状態(電子/正孔対)と閉じ込められた光波(光子)の相互作用が強められ、光と物質のハイブリッドな性質を持つ準粒子が生成される。これはポラリトンと呼ばれる準粒子状態であり、レーザ光

源の低閾値化や太陽電池の高効率化の基礎物理となることが期待されており、さらにそのエネルギー凝縮相(ポラリトン凝縮相)は次世代量子デバイスのための量子媒体としても期待されている。従来の研究ではこのポラリトン状態を形成させるために無機半導体や有機半導体が使用されてきた。しかし、前者においては極低温のみでしかポラリトン状態が安定に形成できない、後者においてはポラリトン凝縮相形成には高いエネルギー注入が必要であるなどの課題があった。

また一方、高効率な新しい太陽電池材料として近年注目を集めている鉛ハライドペロブスカイト半導体は、非常に高い量子収率で蛍光を示すことから、LED やレーザへの応用可能性についても現在研究が盛んにおこなわれている。しかしながら、その発光の物理メカニズムについてはよく理解されていない側面も多く、物性物理の観点でも興味深い研究対象として注目されていた。

研究内容

本研究では、鉛ハライドペロブスカイト半導体を使用することが、室温かつ低エネルギー注入でポラリトン凝縮相を発現させるために極めて有用であることを明らかにした。そのカギとなるのは材料中で形成される電子励起状態の特殊性にあり、全無機元素で構成される鉛ハライドペロブスカイト半導体の一種 (CsPbBr_3) においては、光励起により室温で生成される一対の電子と正孔はスピン相関によりペアリングすることが発見された。このスピン相関電子/正孔対が、共振器中に閉じ込められた光子との間で強く相互作用し、ポラリトン状態を形成する(添付図参照)。このように形成されたポラリトン状態は、プラス電荷とマイナス電荷のクーロン力による通常の電子/正孔対によるポラリトン状態の場合と比較すると、10 倍以上の高密度化でも安定に形成させることが可能である。それに加えて、この CsPbBr_3 中に生成される電子/正孔対は、有機半導体などと比較すると原子核からの束縛が小さく、物質内を比較的自由に動き回ることができる。このことは、巨視的な数のポラリトン粒子が、ある一つのエネルギー状態に落ち込み協同的にふるまう物理現象であるボース・アインシュタイン凝縮^{*3}を発現させるための重要な要素の一つである。山下教授らは実際に本研究において、 CsPbBr_3 光微小共振器中のスピン相関電子正孔対におけるポラリトン凝縮相の発現を、特殊な光学実験により示した。

今後の展開

本研究の成果により、室温でも安定したポラリトン状態を利用したLEDやレーザ、太陽電池などの光電子デバイスの開発が大きく進展することが期待できる。今後はさらに量子デバイスへの応用などに向けて、この室温ポラリトンの生成と伝搬、および凝縮状態の制御技術を高めることが求められる。例えば、共振器ポラリトン構造とトポロジカルフォトニック構造^{*4}を組み合わせたデバイスにより、トポロジカルエッジ状態^{*5}を利用したポラリトンエネルギー伝搬などへ向けた展開が期待される。

謝辞

本研究は、科学技術振興機構(JST)戦略的創造研究推進事業 CREST「トポロジカル材料科学に基づく革新的機能を有する材料・デバイスの創出」研究領域(No. JPMJCR20T4)、日本学術振興会(JSPS)科学研究費国際共同研究強化 B(No. 20KK0088)、同挑戦的研究(萌芽)(No. 20K21000)の支援を受けて行われた。

5. 発表雑誌：

雑誌名：Light: Science & Applications

論文タイトル : Drastic transitions of excited state and coupling regime in all-inorganic perovskite microcavities characterized by exciton/plasmon hybrid natures

著者 : Shuki Enomoto, Tomoya Tagami, Yusuke Ueda, Yuta Moriyama, Kentaro Fujiwara, Shun Takahashi, and Kenichi Yamashita

DOI 番号 : 10. 1038/s41377-021-00701-8

アブストラクト URL : <https://www.nature.com/articles/s41377-021-00701-8>

6. 用語解説 :

※1) ポラリトン状態

光の波長サイズの狭い領域に光波を閉じ込める微細構造である光微小共振器を、半導体材料を用いて作製することにより、半導体中の電子状態(電子/正孔対)と閉じ込められた光波(光子)の相互作用が強められ、光と物質のハイブリッドな性質を持つ準粒子が生成される。生成された準粒子状態は「ポラリトン状態」と呼ばれ、レーザー光源の低閾値化や太陽電池の高効率化の基礎物理となることが期待されている。

※2) 全無機ペロブスカイト

ペロブスカイト型と呼ばれる立方晶系の結晶構造を持つ化合物のうち、鉛ハライドからなる化合物半導体が次世代の光電子材料として知られている。この中でも、すべて無機元素からなる全無機ペロブスカイトは優れた発光特性を示すものとして注目されている。

※3) ボース・アインシュタイン凝縮

巨視的な数のボース粒子がある転移温度以下かつある閾値密度以上である一つのエネルギー状態に落ち込む現象。この凝縮相は多数の粒子が一つの波動関数として振る舞う巨視的な量子状態である。

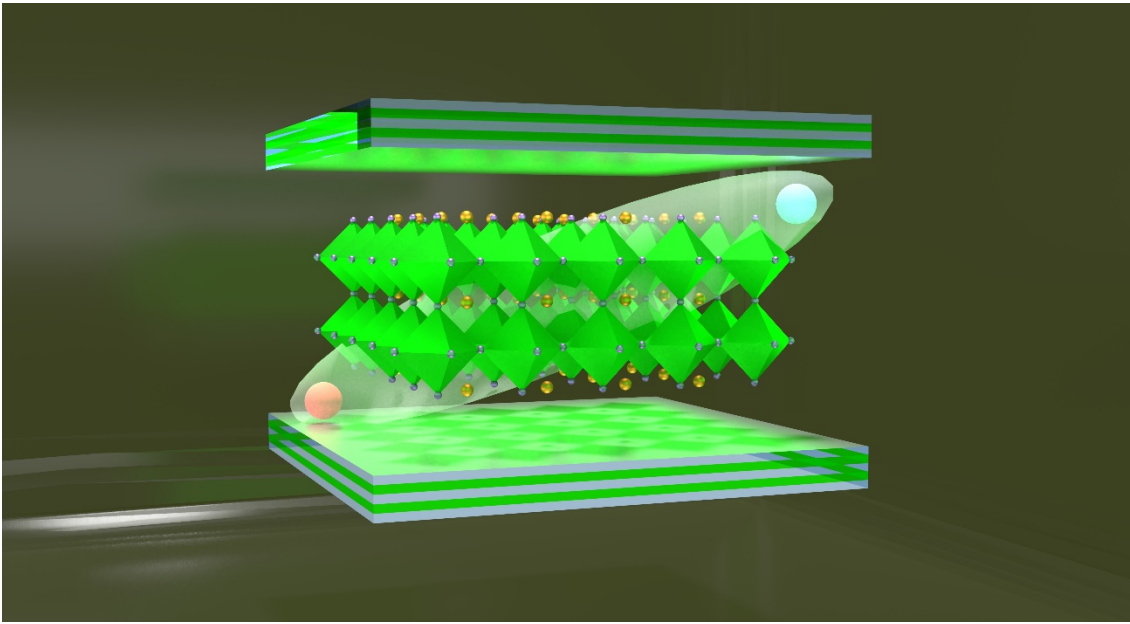
※4) トポロジカルフォトニック構造

光学素子として取り入れられた位相幾何学的(トポロジカル)に区別可能な周期構造や共振器構造などのこと。異なるトポロジエを持つフォトニック構造を融合した新たな光制御技術の開拓が進展している。

※5) トポロジカルエッジ状態

位相幾何学的(トポロジカル)に区別可能な複数の相の間の境界領域。この境界領域はそれぞれの相の内部(バルク)は異なる局在状態(エッジ状態)を示し、外部からの摂動に対して頑強である。

7. 添付図：



ペロブスカイト半導体（正八面体）中で生成された電子-正孔対（赤青の球）が、光微小共振器（上下の反射鏡）内で閉じ込められた光子と相互作用してポラリトン状態を形成する概念図。