

## 論文内容の要旨

博士論文題目 有機半導体マイクロキャビティにおける励起子ポラリトンの緩和およびポラリトンレージングに関する研究

氏 名 水野 英之

### (論文内容の要旨)

マイクロキャビティ中に閉じ込めた分子の励起子とキャビティ中のフォトンが強い相互作用を行う系では、両者が混ざり合った結果キャビティ励起子ポラリトンと呼ばれる新たな準粒子が生成される。励起子ポラリトンは緩和の結果、エネルギー的に最も安定な波数ベクトル  $k=0$  の状態に自発的なコヒーレンスを獲得しつつ凝縮し、結果的にコヒーレントな発光（ポラリトンレージング）を示すことが報告されている。こうした過程は極低温下にある GaAs, CdTe などの無機半導体で発見され、近年になって室温の有機半導体キャビティポラリトンも同様なコヒーレントな発光を示すことが報告されている。この新たな量子状態は室温かつテーブルトップで扱える量子媒体として今後注目を集めると期待され、その凝縮状態を効率よく生成する技術を開発することは今後の量子デバイス開発において重要である。

本研究では、スパッタによって酸化物誘電体周期膜を積層し、上下2層の分布ブラッグ反射ミラー(DBR)を作成した。両者の中間に活性層として 2,7-bis[9,9-di(4-methylphenyl)-fluoren-2-yl]-9,9-di(4-methylphenyl)fluorene (TDAF) の有機半導体薄膜を配置することで強結合状態を実現してポラリトンレーザ発振を示すサンプルを作成し、角度依存蛍光および反射率計測からポラリトン分散曲線を決定した。得られた分散曲線に基づき励起光の波長と入射角を調整して、共鳴条件下で下枝ポラリトンを励起した場合、入射角度によらず低閾値のポラリトンレージングが確認された。一方、上枝ポラリトンを励起した場合やポラリトンに非共鳴な励起光を入射した場合には、ポラリトンレージングの閾値が一桁以上高くなることが観測された。この現象は過去にポラリトン凝縮を示す無機半導体系や、ポラリトン凝縮は示さないがキャビティと強結合した有機薄膜励起子ポラリトンで観測されていた類似の計測結果とは異なる。TDAF キャビティにおいて非共鳴な励起を行なった場合、そのエネルギーは下枝ポラリトンまで緩和するよりも、励起子の状態からキャビティの外に光として散逸してしまう過程が起きていることが実験から明らかになった。

本研究で得られた知見は、今後低閾値でポラリトンレージング状態を実現するための実験手法を提案し、期待されるポラリトン凝縮状態のコヒーレント制御のための研究の方向性を明確にする上で重要な貢献であると考えられる。また、ポラリトンレージングを示す有機分子と示さない有機分子における緩和過程の違いについての手がかりを与えるものとして、今後ポラリトンレージングに適した有機半導体を検討する際の指針となりうる。

氏 名	水野 英之
-----	-------

(論文審査結果の要旨)

本論文では有機半導体材料を用い、室温かつデスクトップにて量子凝縮状態を形成するキャビティ励起子ポラリトン（以下ではポラリトンと呼ぶ）を作成し、その量子凝縮状態を最も効率良く生成する光励起手法について研究を行なっている。将来、ポラリトンを応用した光制御量子デバイスを作成する際には、ダメージを避けるためにできるだけ少ないエネルギーで効率よく量子凝縮状態を生成することが求められる。本研究では、そのためにどのような波長、入射角で励起光を照射することが最適なのか、その詳細について測定を行い、最適な条件を導くことに成功した。

第1章では、微小キャビティ中の光子と励起子の相互作用の結果生じる準粒子であるポラリトンについて、その定義や生成機構、試料の形状や量子的性質について概説した後、本研究においてポラリトン観測に用いた測定手法について述べている。

第2章では、まず本研究で利用したサンプルの作成手法について記述している。分散型ブラッグ反射ミラー(DBR)を設計し、周期的多層膜を実際にスパッタすることで微小キャビティの作成を行った。角度依存透過・反射スペクトルの測定及び面直( $k=0$ )方向への発光の励起強度依存性を評価することにより、およそ  $20 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  以上の励起強度において  $k=0$  ポラリトン凝縮状態の生成を確認した。このポラリトン凝縮状態の生成効率を調べるため、励起光の波長及び入射角度を掃引しつつ  $k=0$  方向へのコヒーレントな発光を測定した結果、上枝、下枝の2つのポラリトンの分散曲線のうち、下枝に沿って共鳴的に励起した場合には、効率よく  $k=0$  状態からの発光が観測されたが、上枝ポラリトン及び、上枝と下枝の中間にあたるエネルギー領域の励起光を入射した場合には、 $k=0$  への緩和効率が下がることが示された。この結果は先行報告のある  $j$  会合体の強結合状態における緩和効率の報告結果とは対照的であり、多くの研究で用いられてきた非共鳴な励起光を用いて上枝ポラリトンを励起する手法よりも、下枝ポラリトンバンドを中程度の入射角で直接励起した場合に、最も効率よく  $k=0$  状態を生成することが示された。

第3章では、フェムト秒ダブルパルスを用いて、ポラリトン間の干渉を観測する実験を行なった。実験の結果、光学干渉と同程度の遅延時間においてのみ干渉効果が計測され、ポラリトンの  $k=0$  状態への緩和が非常に速いことが間接的に示された。

以上のように本論文では、ポラリトンの緩和過程について、励起光の励起波長と入射角度の二つのパラメータについて詳細な測定を行うことにより、効率よくポラリトン凝縮状態を生成する励起スキームについて明らかにすることができた。このことは今後研究を進めるポラリトン凝縮状態のコヒーレント制御実験において重要な知見であり、学術的に意義がある。よって、審査委員一同は、本論文が博士（理学）論文として価値あるものと認めた。