

様式 C - 7 - 1

平成30年度科学研究費助成事業（科学研究費補助金）実績報告書（研究実績報告書）

| | | | | |
|----------|----|---------------|------|-------|
| 所属研究機関名称 | | 奈良先端科学技術大学院大学 | 機関番号 | 14603 |
| 研究代表者 | 部局 | 先端科学技術研究科 | | |
| | 職 | 准教授 | | |
| | 氏名 | 香月 浩之 | | |

1. 研究種目名 基盤研究(B)(一般) 2. 課題番号 18H01900

3. 研究課題名 有機半導体薄膜を用いた室温動作光制御ポラリトンデバイスの作成

4. 研究期間 平成30年度～令和2年度 5. 領域番号・区分 -

6. 研究実績の概要

キャビティ中に閉じ込められた光子と有機半導体の励起子が強結合して生成されるキャビティ励起子ポラリトン（以下ポラリトンと省略）は、室温環境下において量子的な性質を示すポラリトン凝縮状態を生成し、その基礎的な物性、光デバイスへの応用の面で非常に興味深い量子系である。本研究では有機半導体薄膜を活性層とした分布反射型(DBR)マイクロキャビティをマグネトロンスパッタと熱蒸着装置を利用して作成した。角度依存反射スペクトルの計測から、ポラリトンに特有の反交差型の分散曲線が得られ、その解析から相互作用の強度を示す真空ラビ分裂パラメータ $V=230\text{meV}$ という値が得られ、ポラリトンの生成を確認した。また、UVレーザー光で閾値以上の強度で励起することにより、ポラリトン凝縮状態の生成も確認できた。発光強度の励起光入射角、励起波長及び励起強度依存性を測定し、励起光の入射角度に対する依存性はあまり強くないが、ポラリトンの下枝分散曲線に沿って、共鳴励起を行なった場合に最も効率の良い $k=0$ 状態からの発光が観測されることが確認された。これらの結果は従来多く用いられていた非共鳴的にポラリトンを励起して、そこからの緩和で最低準位にポピュレーションを供給する手法とは対照的であり、可変な励起波長光源が必要となるが、有機薄膜に対するダメージを避けて低閾値で励起するためには望ましい手法である。これらの実験と並行して、ダブルパルス励起による有機半導体単結晶のTHzコヒーレントフォノン振幅制御実験を行い、3~4THz周辺に存在する複数の振動モード間の相対振幅について、ダブルパルス間の遅延時間を制御することにより、質の高い振幅制御を実施することができた。特定の振動モードの励起は特定の結晶ひずみの誘起を可能とし、さらに電子フォノン相互作用の制御などに繋がると期待しており、さらなる本手法の発展を計画している。

7. キーワード

励起子ポラリトン コヒーレント制御 超高速ダイナミクス

8. 現在までの進捗状況

区分 (2) おおむね順調に進展している。

理由
実際にDBRミラーを自分で設計製作するところから開始して、室温においてポラリトン凝縮状態を実現できる試料作成のノウハウを得ることができたことは大きな前進である。ポラリトン凝縮閾値の評価でも先行する研究にそれほど遜色のない結果が得られており、実験室環境のデメリット（真空チャンパー中での一貫したサンプル作成ができない）などを考慮すれば、十分納得のできる結果であると考えている。ポラリトンの物性評価のための光学装置系の構築も、角度依存反射分光装置や角度依存励起-k空間（運動量空間）イメージング測定装置を立ち上げることができ、今後の実験で必要となる基礎的な測定手法及び測定装置を確立することができた。一連の実験により、最も効率よくポラリトン凝縮状態を達成できる励起パルスの条件について解明することができた。有機半導体薄膜に対するダメージを軽減する上で、低閾値で励起実験を行えることは非常に重要であり、その意味でも意味のある成果であると言える。また、これとは別にTHz領域でのコヒーレント制御実験も行い、有機半導体単結晶をターゲットとして、マルチモードのTHz振動モード間の振幅制御をダブルパルス励起のタイミングを操作することで複数のモードの振幅比率を熱平衡分布から大きく外れた状態に準備する手法が確立できた。今後、ポラリトンベースの実験とこれまで行って来たコヒーレント制御実験の手法を統合して行くことで、目標としているポラリトンをターゲットとしたコヒーレント制御に挑戦して行く予定である。

2 版

9. 今後の研究の推進方策

励起子ポラリトンからの発光、特に閾値以上の励起光を入射してポラリトンレージングしている状態での発光の時空間コヒーレンスの評価、及び時間プロファイルの評価を行うための装置を作成する。現在の励起手法では、励起光の位相は終状態 ($k=0$ の状態)の位相に影響を与えず、中間の緩和過程によって一度コヒーレンスは失われていると考えられる。終状態のコヒーレンスは現在自然発生的に成長すると考えているが、もし、シードとなるコヒーレントな光を適切なタイミングで入射した場合、そのシード光を源として増幅していくメカニズムが存在すると考えている。通常の光レーザー発振におけるoptical parametric oscillatorのようなイメージである。有機半導体を用いたポラリトンレージングにおいて、パラメトリック増幅過程の報告はこれまでになく、この現象の実現を次の段階の目標として研究を進める予定である。本手法はシード光のレイアウトを変えればアップコンバージョン分光実験にも使用できる装置となるため、ポラリトンからの発光の時間プロファイルを計測する手法にも応用できると考えている。実際にはアップコンバージョンで200nm周辺の光を生成するよりもダウンコンバージョンで400nm近辺の発光を生成した方が測定を行いやすい可能性もあるため、どちらの手法を用いるかは実際に実験を行いつつ決定する。また、当初からの計画にあったマルチスポットによる励起実験の準備にも取り掛かる。400nm周辺の波長は液晶位相変調素子にダメージを与える可能性があるため、800nmの光に位相変調を行い、その後二倍波をとることで、間隔の隣接したダブルスポット励起形状などを準備する。非線形過程を経ることで波面制御に複雑な過程が加わるものの、ダブルスポット励起のような単純な波面制御であれば問題なく実施できると考えており、実験によってその確認を行う。

10. 研究発表(平成30年度の研究成果)

〔雑誌論文〕 計2件(うち査読付論文 2件/うち国際共著論文 0件/うちオープンアクセス 0件)

| | |
|--------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------|
| 1. 著者名 Yano Keisuke, Katsuki Hiroyuki, Yanagi Hisao | 4. 巻 150 |
| 2. 論文標題 Mode selective excitation of terahertz vibrations in single crystalline rubrene | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics | 6. 最初と最後の頁 054503 ~ 054503 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5068732 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------|
| 1. 著者名 Mizuno Hideyuki, Akagi Hiroshi, Tsubouchi Masaaki, Itakura Ryuji, Katsuki Hiroyuki, Yanagi Hisao | 4. 巻 58 |
| 2. 論文標題 Incident angle and photon energy dependence of polariton lasing in organic microcavity | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 052003 ~ 052003 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab0507 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計11件(うち招待講演 1件/うち国際学会 1件)

| |
|----------------------------------------------------------------------------|
| 1. 発表者名 水野英之、柳久雄、香月浩之、赤木浩、坪内雅明、板倉隆二 |
| 2. 発表標題 Ultrafast Relaxation Dynamics of Organic Microcavity Polaritons |
| 3. 学会等名 阪大関西研合同シンポジウム |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1. 発表者名 Hideyuki Mizuno, Hisao Yanagi, Hiroshi Akagi, Masaaki Tsubouchi, Ryuji Itakura, and Hiroyuki Katsuki |
| 2. 発表標題 Ultrafast Relaxation Dynamics of Room-temperature Organic Microcavity Polaritons |
| 3. 学会等名 EXCON2018 (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 香月浩之 |
| 2. 発表標題 有機薄膜ポラリトンを用いたコヒーレント制御へ向けて |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 1. 発表者名 C. Laurio, H. Katsuki and H. Yanagi |
| 2. 発表標題 One-dimensional dielectric multilayer for the investigation of long-propagating Bloch surface wave polaritons |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---------------------------------------------|
| 1. 発表者名 水野英之, 柳久雄, 香月浩之, 赤木浩, 坪内雅明, 板倉隆二 |
| 2. 発表標題 室温における有機半導体キャピティポラリトン誘導散乱過程の観測 |
| 3. 学会等名 日本物理学会秋季大会 |
| 4. 発表年 2018年 |

2 版

| |
|------------------------------------------|
| 1. 発表者名 矢野 敬祐, 香月 浩之, 柳 久雄 |
| 2. 発表標題 遅延ダブルパルス励起を用いたルブレン結晶のフォノン振幅制御 |
| 3. 学会等名 分子科学討論会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 西脇圭佑, 香月浩之, 柳久雄 |
| 2. 発表標題 一次元有機半導体結晶における空間コヒーレンスの評価 |
| 3. 学会等名 分子科学討論会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名 香月浩之, 大槻幸義, 安食徹, 後藤悠, 大森賢治 |
| 2. 発表標題 強電場レーザーパルスを用いた波束の分散制御 |
| 3. 学会等名 分子科学討論会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|------------------------------------------------------|
| 1. 発表者名 吉田 航, 大河内 裕斗, 香月 浩之, 柳 久雄 |
| 2. 発表標題 フェムト秒紫外ポンプ 白色プローブ法によるTPCO結晶の励起状態ダイナミクスの研究 |
| 3. 学会等名 日本化学会年会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---------------------------|
| 1. 発表者名 香月浩之 |
| 2. 発表標題 分子性固体中の量子干渉の制御 |
| 3. 学会等名 日本化学会年会（招待講演） |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|------------------------------------------|
| 1. 発表者名 香月浩之 |
| 2. 発表標題 有機半導体を利用したポラリトンのコヒーレント制御を目指して |
| 3. 学会等名 分子研研究会 |
| 4. 発表年 2018年 |

〔図書〕 計0件

1 1. 研究成果による産業財産権の出願・取得状況

計0件（うち出願0件 / うち取得0件）

1 2. 科研費を使用して開催した国際研究集会

計0件

1 3. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

-

1 4. 備考

個人ホームページ（研究内容について記載）
<https://hkatsuki21.wixsite.com/mysite2>