

## 高Q値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緩和

奈良先端大物質

○水野英之, 香月浩之, 柳久雄

## Relaxation of Exciton-polariton in High Q-factor Organic Microcavity

○Hideyuki Mizuno, Hiroyuki Katsuki, Hisao Yanagi

Department of Materials Science,

Nara Institute of Science and Technology, Japan

**【Abstract】** Strong interaction between the excitons and microcavity-photons results in generation of new eigenstates called exciton-polaritons (EPs). When the density of the polariton is above threshold, EP condensation has been achieved with both of inorganic and organic microcavities. The mechanism of EP condensation is well studied for the inorganic materials, However, such study is still on the way for organic microcavities due to the existence of intra-molecular vibrational modes and rather localized nature of the excitons. In general, higher Q-factor make lifetime of polariton longer and is necessary for the condensation. In this report, as a first step for further investigation into ultrafast dynamics of the condensation, we report pump power dependence of angle resolved photoluminescence from a physically-contacted organic microcavity.

**【序】** マイクロキャビティにおいて、中に閉じ込められた光子と励起子の相互作用が強い時、新たな固有状態である励起子ポラリトンが形成される。励起子ポラリトンはボース粒子であり、キャビティの Q 値が十分に高くポラリトンが長い寿命を持つとき高密度の光励起によってポラリトン凝縮と呼ばれる量子凝縮を形成することが知られている[1]。ポラリトン凝縮は無機半導体マイクロキャビティを用いて初めて報告されたが、近年ポラリトン凝縮は有機半導体においても実現された[2][3]。しかしながら有機分子は振動構造を有しており、マイクロキャビティにおいて分子振動がポラリトン凝縮への緩和過程に寄与することが知られている[4]。本研究は有機半導体マイクロキャビティにおいてポラリトン凝縮に対し有機分子の振動構造が及ぼす影響について詳細に調査することを目的としており、今回はポラリトン凝縮実現に向けて、より高い Q 値のマイクロキャビティの発光の励起強度依存性について調べた。

**【実験】** サンプルは、石英基板上に  $\text{SiO}_2$  と  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  を交互に 9.5 周期スパッタした多層膜ミラー

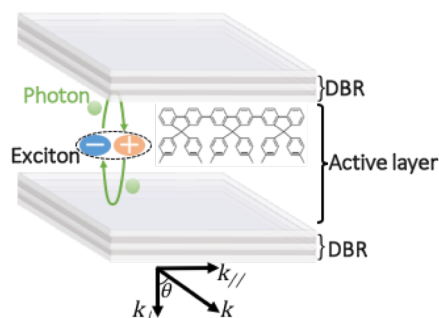


Fig. 1. Structure of an organic microcavity.

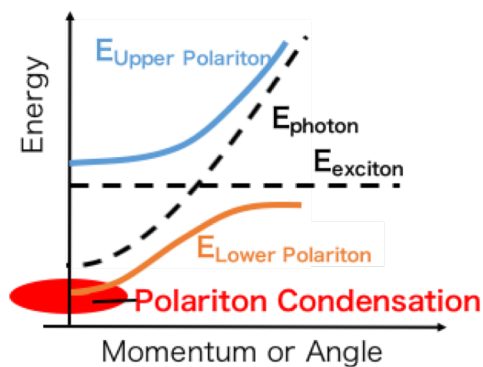


Fig. 2. Angle dependence of exciton-polariton dispersion.

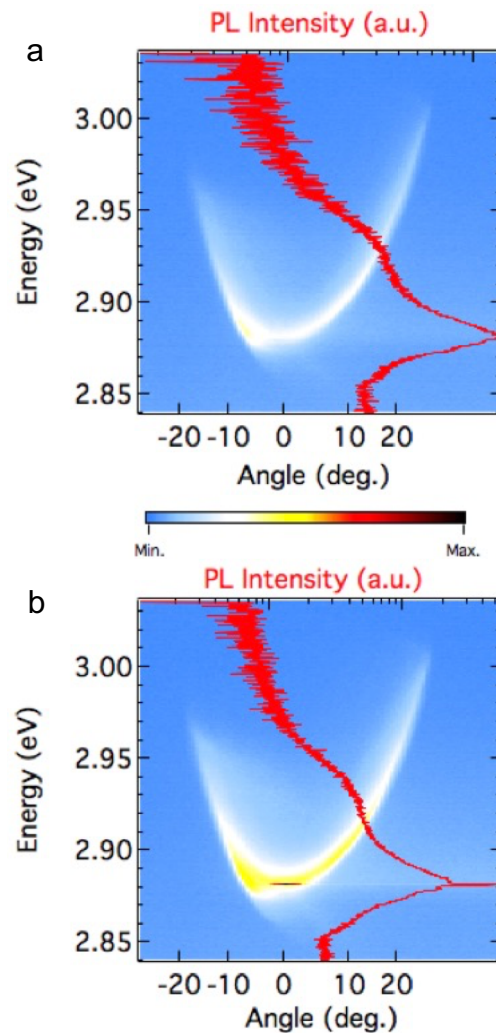
(Distributed Bragg Reflector) を産総研ナノプロセッシング施設において作製した。ミラーの上に真空蒸着によって厚さ約 130 nm の有機半導体 TDAF 薄膜を成膜し、もう一枚のミラーを TDAF が成膜されたミラーの上のせて両側から金属マウントで押さえつけ Q 値約 100 のマイクロキャビティを作製した。キャビティ内に形成された状態の分散関係とエネルギー緩和について調べるために、角度分解発光スペクトルを測定した。励起光源としては量子科学技術研究開発機構関西光科学研究所のフェムト秒パルスレーザー再生増幅器(パルス幅約 80 fs, 繰り返し周期 1 kHz)の第二次高調波(3.14 eV)を用いた。さらに角度分解発光スペクトルの励起強度依存性についても調べた。

**【結果・考察】** マイクロキャビティの励起強度  $12\ \mu\text{W}$  における角度分解発光スペクトル像を Fig.3a に示す。このイメージは対物レンズを用いて結像させた角度空間イメージを分光し得た。0 度付近で約 2.885 eV をピークとした発光が、角度の増加に従って高エネルギー側へシフトする様子がみられた。この角度依存性を示す発光ピークは励起子エネルギー 3.5 eV より低エネルギー側に形成された Lower Polariton Branch(LPB)であると考えられる。しかし今回のサンプルではより高エネルギー側に形成される Upper Polariton Branch(UPB)を観測できていないため、励起子ポラリトンが形成されている際に特徴的な LPB と UPB の反交差を現段階では確認できていない。また、観測された分散曲線において 0 度付近の発光強度が高角度の発光強度に比べて相対的に高かったことから、高エネルギーの励起子ポラリトンが LPB の最低エネルギー状態へ緩和していることが示唆される。

次に励起光  $33\ \mu\text{W}$  における角度分解発光スペクトル像を Fig.3b に示す。高角度域において発光強度が相対的に弱くなり、0 度付近でより強く発光した。また a と b の 0 度における発光スペクトルを比べると発光ピークの半値線幅は 17 meV から 0.55 meV まで狭線化した(Fig.3a,b 赤線)。しかし、高密度の励起子ポラリトンのクーロン相互作用によって引き起こされる発光ピークのブルーシフトはみられなかったことからポラリトン凝縮ではなく通常のレーザー発振であると考えられる。より詳細な議論については当日の発表で行う。

#### 【参考文献】

- [1] Kasprzak, J. et al. *Nature* **443**, 409–414 (2006).
- [2] Daskalakis, K. S. et al. *Nature Mater.* **13**, 271–278 (2014).
- [3] Plumhof, J. D. et al. *Nature Mater.* **13**, 247–252 (2014)
- [4] Agranovich, V. M. et al. *Chem. Rev.* **111**, 5179–5214 (2011).



**Fig. 3.** Angle resolved photoluminescence images and photoluminescence spectra. (a) pump power  $12\ \mu\text{W}$ , (b)  $33\ \mu\text{W}$ .