

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：14603

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287093

研究課題名(和文) 有機分子性結晶における励起子ポラリトンのコヒーレント制御

研究課題名(英文) Coherent control of cavity polaritons based on the organic molecular crystal

研究代表者

香月 浩之 (Katsuki, Hiroyuki)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・准教授

研究者番号：10390642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：有機半導体薄膜を用いたキャビティポラリトンの作成と、その量子状態を外部から制御することを目標に、状態制御技術の開発を行った。ミラーに有機半導体薄膜を蒸着し、上からミラーをかぶせてキャビティを作成した。角度依存反射・蛍光スペクトルの解析から最大300meV程度の真空ラビ分裂エネルギーが得られ、強結合状態の生成を確認した。

また、二次元平面内の量子状態をコヒーレント制御する手法開発のために、空間位相変調素子を利用した振幅位相制御の手法開発を行った。対象として固体パラ水素を選択し、二次元平面内での量子状態分布を制御できることが確認され、更にその状態を画像の強度分布として一括して取り込むことに成功した。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the preparation of a cavity polariton system based on the thin layer of organic semiconductor as the active material. We created the cavity mechanically by putting organic thin layer between two high reflective mirrors. The formation of the cavity polaritons was checked by monitoring the angle dependent reflectivity and fluorescence measurements. The vacuum Rabi splitting was estimated to be 300meV at the maximum.

The demonstration of the coherent control of two dimensional distribution of the excited state is performed using solid para-hydrogen as a sample. The two-dimensional distribution of the excited states is designed by modulating the wave front of the pump laser pulses by the spatial light modulator. We have successfully retrieved the 2x2 spot patterns of the excited states and also checked the relative phase factor between the neighboring spots are also maintained in each spot.

研究分野：コヒーレント制御、非線形分光

キーワード：励起子ポラリトン 強結合状態

1. 研究開始当初の背景

励起子ポラリトンは、固体中の励起子と光の量子である光子が結合して生成する準粒子の一種である。ポラリトンは光としての特徴と励起子としての特徴を併せ持っており、自由電子のおよそ 10^{-4} 倍程度という非常に小さな有効質量を持つ。結果的にポラリトンは大きな量子性を示し、光励起によって生成したポラリトンが緩和の過程で自発的な時空間コヒーレンスを獲得し、最安定なバンドの底に蓄積されるポラリトン凝縮などの現象を引き起こされる。これらの現象は基礎科学として興味深いだけでなく、量子コンピュータ技術への応用などの研究が進められており、次世代の光科学技術においてポラリトンが持つ潜在的ポテンシャルは非常に高いと期待される。無機半導体量子ドットを活性媒質として用いた励起子ポラリトンは、その安定化エネルギーの小ささから極低温でしか存在しないため、実験も極低温で行う必要がある。一方、有機半導体を活性媒質としたポラリトンは室温でも安定に存在でき、実験の容易さや将来的な応用の観点からも興味深い。

2. 研究の目的

本研究では、有機半導体を活性物質として閉じ込めた微小光共振器を作成し、励起子ポラリトンの緩和ダイナミクスに焦点を当てる。時間分解蛍光スペクトルや温度依存性の測定から、無機半導体におけるポラリトン緩和モデルに対し、内部振動準位の存在や励起子の空間広がりやの違い等を考慮に入れた有機半導体におけるポラリトン緩和モデルの構築を目標に強結合状態の観測とその緩和経路の観測を目指す。また、位相変調素子を用いて高度にデザインされたレーザー光を用いて、空間的に広がった量子状態を対象に、そのコヒーレンス分布を外部から光によって制御する手法の開発を目指す。これらを組み合わせることで、二次元平面内でのポラリトンの運動量の制御などの実現を目標にそのための手法の開発を目指す。

3. 研究の方法

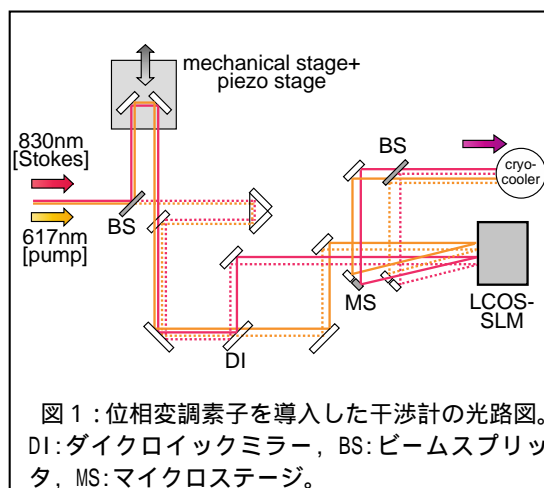
(1) 有機半導体励起子ポラリトン実験

ポラリトンはキャビティ中の光子と励起子が結合してできる準粒子である。有機半導体結晶として、アントラセンと TDAF 分子を用いた。簡便な手法によるキャビティポラリトンの作成を目指し、アントラセン飽和溶液を2枚の向い合せの DBR ミラーの隙間に毛細管現象で流し込む手法[1]と片側の DBR ミラーに TDAF 薄膜を蒸着し、その上にもう一枚の DBR ミラーを貼り合わせて物理的に圧力をかける、という手法を試みた。作成した試料の状態を評価するための手法として、角度分

解反射率計測と角度分解蛍光計測が用いられる。これらの実験から得られる分散曲線を解析することによって、相互作用の強度を表す尺度である真空ラビ分裂パラメータを求めることが可能となる。これらの測定装置を立ち上げ、測定を行うプログラムの開発を行った。

(2) 二次元位相制御光による干渉制御実験

ターゲットとしてこれまでの研究で実績のある固体パラ水素と CARS のスキームを応用し、 $v=1$ 励起状態の空間分布を作成し、さらにその分布を量子干渉により制御する実験を行った[2]。励起にはインパルスラマン遷移を用い、フェムト秒オシレータを光源とする 617nm, 830nm のパルスをそれぞれポンプ光、ストークス光として用いた。両パルスを干渉計に入射してダブルパルスとし、その遅延時間を変えることで相対位相を変化させ、干渉のフリンジの計測を行った。位相変調器を用いてポンプ・ストークスの各パルスの波面を任意に変調できる。このパルスを用いて固体パラ水素中に励起状態の空間分布を作成し、そこにプローブ光を入射した際のアンチストークス散乱光をイメージとして一括して読み出すことにより、二次元平面内の励起状態の分布を読み出すことができる。干渉計の構造は図1のようになっており、励起に使用するポンプ、ストークスの各パルスに異なった波面の制御が可能となっている。



4. 研究成果

(1) 有機半導体励起子ポラリトン実験

アントラセン、TDAF のどちらの試料でも強結合状態が観測され、アントラセンの場合にはラビ分裂パラメータとして 200meV 程度、TDAF の場合で 300meV 程度の値が得られた。図2に TDAF マイクロキャビティで観測された角度依存反射率スペクトルを示す。UP(upper polariton)、LP(lower polariton)の両分枝が観測されている。得られた分散曲

線から光子と励起子の 2×2 ハミルトニアンモデルを用いて真空ラビ分裂パラメータを求めたところ 300meV の値が得られた。

次に強励起光源を用いて凝縮状態の実現を目指したが、サンプルのダメージしきい値まで励起強度を上げてはポラリトン凝縮は観測されなかった。理由は DBR ミラーの反射率が 90%程度と低く、更に対向した二枚の DBR 間の平行度が悪く、キャビティの Q 値が高くないために十分なポラリトンの密度が達成できていないことが考えられる。この点を克服するためには、DBR ミラーの反射率を高くすることに加えて、キャビティの平面性を確保するために過去にポラリトン凝縮が報告されているようなスパッタ装置を利用して酸化薄膜の積層を行う必要があると考えられる。

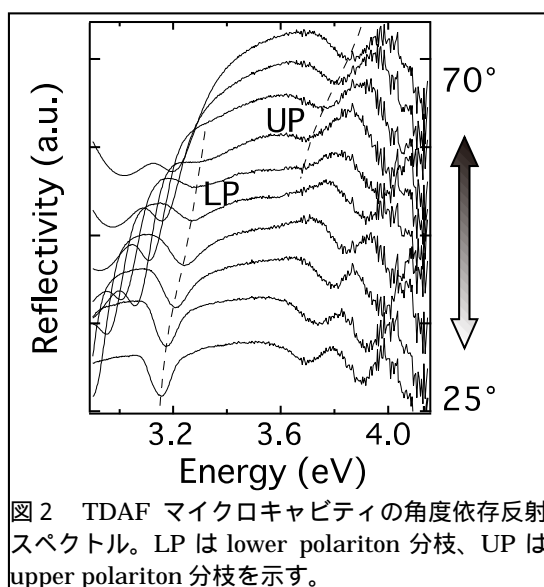


図2 TDAF マイクロキャビティの角度依存反射スペクトル。LP は lower polariton 分枝、UP は upper polariton 分枝を示す。

(2) 二次元位相制御光による干渉制御実験

位相変調によって集光面において 2×2 のスポットが並ぶテストパターンを作成した。更にこの4つのスポットに対し任意の相対位相がつけられるようなマスクとフラットな(スポット間の位相差のない)マスクを設計した。これらのマスクを使用して、最初の書き込みパルスとして位相差をつけたパルスを用い、干渉測定用に波面がフラットなパルスを用いることで、スポットごとに異なる相対位相で、波動関数の干渉を起こすことができる。干渉の結果、励起状態の波動関数の位相の差が強度に変換され、イメージとして読み出せる。3つの異なるマスク(位相差なし、隣接スポット間に位相差 90° および 180° のもの)を用い、励起パルス間の遅延時間を掃引して得られた結果を図3に示す。読み出されたアンチストークス光のイメージは 2×2 の分布形状を示しており、固体パラ水素中に生成している振動励起状態の分布をそのまま取り出せていることがわかる。更に隣接するスポットの励起状態の相対位相を変化させることで、得られる励起状態のフリンジの相

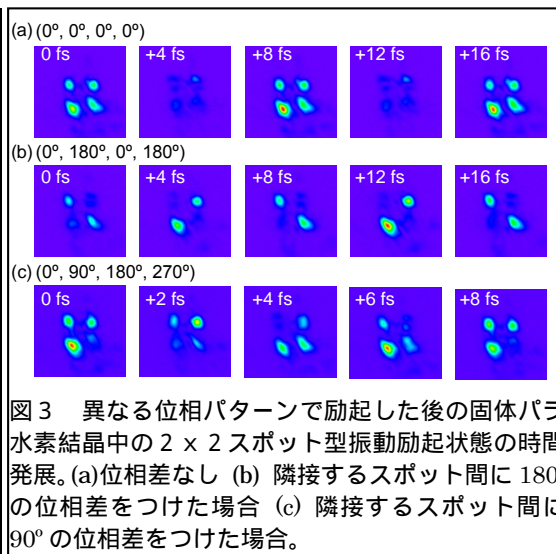


図3 異なる位相パターンで励起した後の固体パラ水素結晶中の 2×2 スポット型振動励起状態の時間発展。(a)位相差なし (b) 隣接するスポット間に 180° の位相差をつけた場合 (c) 隣接するスポット間に 90° の位相差をつけた場合。

対位相も設計通りに精度良く変化していることがわかった。解析の結果、計算によって光に与えた位相に対し、読み出された相対位相の誤差は最大でも 20° 以内に収まっていることが示された。

今回の結果から、スパッタ装置などを使用することなく、有機半導体薄膜の強結合状態を容易に作成することができ、およそ 300meV という大きなラビ分裂パラメータが得られた。スパッタによる温度上昇などの影響がないために、使用できる試料に制限がないため、強結合状態の様々な時間依存ダイナミクスを調べるために本手法は有効であると思われる。一方、励起光強度を強くしてポラリトンの密度を上げた場合にも、凝縮状態を観測することはできなかった。この理由はキャビティの Q 値が十分高くないことに原因があると考えられ、その目的にはスパッタ法による成膜が必要になると考えられる。次に、二次元位相変調素子を利用した励起状態分布の制御と読み出しについては、固体パラ水素を対象として、デザインしたとおりの励起状態分布を作成でき、更にそれをイメージとして一括して読み出せることが明らかになった。同様な手法はキャビティポラリトンの励起にも応用することが期待され、二次元平面内でポラリトンの励起状態分布を作りたい場合などに応用することができると考えている。

参考文献

- [1] K. Bando et al., Appl. Phys. Exp. **6**, 111601 (2013).
- [2] H. Katsuki et al., Phys. Rev. B **88**, 014507 (2013).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

(1) “Manipulation and visualization of two-dimensional phase distribution of vibrational wavefunctions in solid para-hydrogen crystal” 査読有

H. Katsuki, K. Ohmori, T. Horie, H. Yanagi, and K. Ohmori, Phys. Rev. B **92**, 94511 (2015). DOI: 10.1103/PhysRevB.92.094511

[学会発表](計 10 件)

(1) 「有機半導体マイクロキャビティにおける緩和・凝縮過程の観測」

水野 英之, 香月 浩之, 柳 久雄

第 10 回分子科学討論会, 2016.9.15, 神戸ファッションマート(兵庫県神戸市)

(2) 「二次元位相変調器を用いた固体パラ水素の振動波動関数の位相制御」

香月 浩之, 大森 健三, 堀江 徹, 柳 久雄, 大森 賢治

第 9 回分子科学討論会, 2015.9.19, 東京工業大学(東京都目黒区)

(3) Hiroyuki Katsuki

“ultrafast manipulation of coherent states ~ from gas phase to condensed phase”

Workshop on Hierarchy of Quantum Mechanics (招待講演)

2015.2.21~23 分子科学研究所(愛知県岡崎市)

(4) Hiroyuki Katsuki

“ultrafast manipulation of coherent states in gas and condensed phases”

11th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (招待講演)

2014.10.6~10 東北大学(宮城県仙台市)

(5) 大森健三、堀江徹、柳久雄、香月浩之

「位相変調技術を用いた量子干渉イメージの観測」

第 8 回分子科学討論会

2014.9.21~24 広島大学(広島県東広島市)

(以下 5 件省略)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

香月 浩之 (KATSUKI, Hiroyuki)

奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・准教授

研究者番号：10390642