

平成 22 年 6 月 1 日現在

研究種目：基盤研究 (C)  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19540342  
 研究課題名 (和文)  
 有機単結晶型微小共振器における異方性キャビティポラリトン  
 研究課題名 (英文)  
 Anisotropic cavity polaritons in a single-crystalline organic microcavity  
 研究代表者  
 近藤 久雄 (KONDO HISAO)  
 愛媛大学・大学院理工学研究科・講師  
 研究者番号：70274305

## 研究成果の概要 (和文)：

我々は光活性層にアントラセン単結晶を用いることで、初めて強い光学異方性を有する有機微小共振器を作製した。本研究では、アントラセン単結晶に起因する異方性キャビティポラリトンの入射角分散を測定し、その結果から真空ラビ分裂エネルギーを見積もった。さらに入射角分散の結晶軸に対する入射面依存性を観測した。理論計算で予想されていたように、入射面方向依存性がキャビティポラリトン分散にはほとんど現れないことが確認された。

## 研究成果の概要 (英文)：

We have fabricated an intensively anisotropic organic microcavity using an anthracene single crystal as an optical active layer. In the study, incident angle dispersions of anisotropic cavity polaritons were observed for the microcavity, and then vacuum Rabi splitting energies were obtained from the dispersion. We have experimentally confirmed the theoretical prediction that the angle dispersion hardly depends on incident plane direction for the crystallographic axis of the anthracene.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2008年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009年度	400,000	120,000	520,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

## 研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：光物性，励起子，微小共振器，キャビティポラリトン，有機単結晶

## 1. 研究開始当初の背景

波長サイズの共振器長をもつ微小光共振器において、共振器内に存在する光活性層中の励起子とキャビティモード（共振器モード）とが可逆的な相互作用を行い、キャビティポラリトンと呼ばれる新たな状態が生じ

る。キャビティポラリトンの研究は、これまで光活性層に半導体を用いて行われてきたが、研究開始当初、種々の有機物質を光活性層とする有機微小共振器も注目されるようになった。しかしこのとき発表されていた有機微小共振器の光活性層は、有機色素分子を

透明媒質に分散させたもの[1]や多結晶のもの[2]しかなく、単結晶の光活性層をもつ有機微小共振器は我々の開発したもの[3]を除いて存在しなかった。

一般に有機結晶は強い光学異方性をもつため、光活性層として有機単結晶を用いると強い異方性をもったキャビティポラリトンが期待される。このようなキャビティポラリトンの分散を Litinskaya らは理論的に導いた[4]。彼らの計算結果によると①unit cellに2分子もつアントラセンやテトラセンの場合、ダビドフ分裂した2つの励起子に関してキャビティポラリトンは2つに分裂すること、②個々のキャビティポラリトンの分散は結晶軸に対する偏光配置(s偏光, p偏光)の違いにほとんど関係しないこと、がそれぞれ示された。

このような理論結果を実験的に確認するには単結晶型の有機微小共振器が必要である。我々はすでに、アントラセン単結晶を光活性層とする微小共振器を開発しており、これが異方性キャビティポラリトンの研究には最適の系と考えた。本研究は、アントラセン単結晶微小共振器を用いて、入射角に対するキャビティポラリトン分散の観測や、分散の偏光配置依存性を観測し、Litinskaya らの理論で予想された分散特性をはじめて確認したものである。

文献

- [1] D. G. Lidzey, et al., Nature 395 (1998), 53.
- [2] R. J. Holmes, et al., Phys. Rev. Lett. 93 (2004), 186404.
- [3] H. Kondo, et al., J. Lumin. 119-120 (2006), 137.
- [4] M. Litinskaya, et al., Phys. Stat. Sol. (a) 201 (2004), 646.

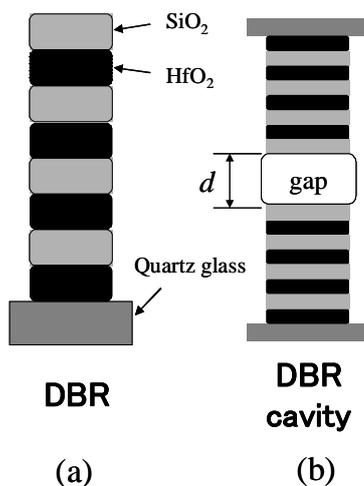


図1 (a) DBRの構造

(b) 微小共振器構造

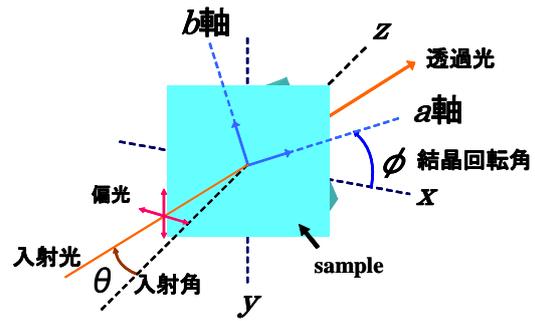


図2 結晶方位と入射角との関係

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、有機単結晶型微小共振器に対してキャビティポラリトンの入射角依存性を測定してポラリトンモードの入射角分散を得ること、さらに入射角分散と結晶軸に対する偏光配置との間の相関を調べ、Litinskaya らの理論で予想された分散特性を実験的に確認することである。

## 3. 研究の方法

試料として我々が開発したアントラセン単結晶からなる微小共振器を用いた。この試料の構造を図1に示す。光共振器のミラーには図1(a)に示した  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多層膜からなるDBR (Distributed Bragg Reflector) を用いた。これを2枚互いに向かい合わせて重ね、図1(b)のような構造を作る。2枚のDBRの隙間(gap)の間隔を光の波長程度 ( $\sim 0.1 \mu\text{m}$ ) になるように十分接近させると微小共振器となる。このgapにアントラセン単結晶を育成する。まず図1(b)のDBR共振器をアントラセン融液に浸し、gap内に融液を浸透させる。これを取り出しゆっくり冷却することでgap内部が単結晶薄膜で満たされる。このようにしてアントラセン単結晶からなる微小共振器を作製した。

アントラセン単結晶にはダビドフ分裂した2種類の励起子が存在し、高エネルギー側の励起子をa励起子、低エネルギー側をb励起子という。これらに対応する直線偏光をa偏光、b偏光と呼び、互いに直交している。ここで結晶軸(a, b軸)と入射面(xz面)との関係を図2に示す。 $\theta$ は試料表面に対する入射角、 $\phi$ は結晶a軸と入射面のなす角をそれぞれ表す。本研究では $\phi=0^\circ$ 及び $90^\circ$ の配置で偏光透過スペクトルの入射角依存性を測定し、a偏光、b偏光に対するキャビティポラリトンモードの入射角分散を測定した。この分散より真空ラビ分裂エネルギーの見積もりを行った。さらに、偏光透過スペクトルやキャビティポラリトンの入射角分散が $\phi=0^\circ$ の場合と $90^\circ$ とでどのような違いがあるのかについて検討した。

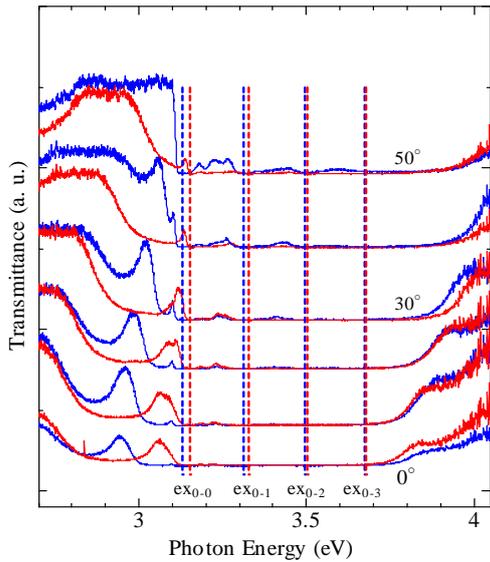


図3  $\phi = 90^\circ$  における偏光透過スペクトルの入射角依存性。a 偏光（赤）が s 偏光配置、b 偏光（青）が p 偏光配置である。

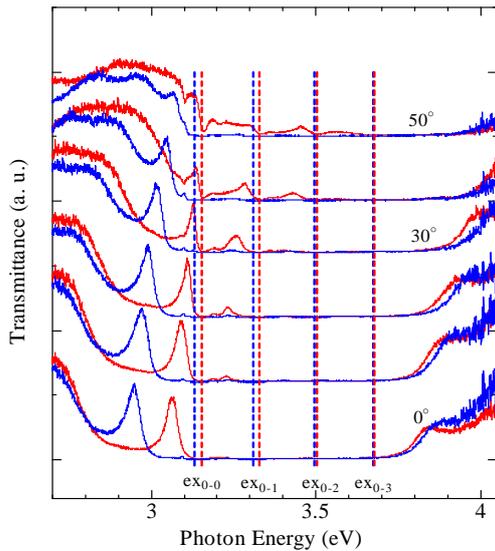


図4  $\phi = 0^\circ$  における偏光透過スペクトルの入射角依存性。a 偏光（赤）が p 偏光配置、b 偏光（青）が s 偏光配置である。

#### 4. 研究成果

偏光透過スペクトルの入射角依存性を図3及び図4にそれぞれ示す。この試料はアントラセン膜厚 140 nm、 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  DBR 片面 5 対（両面 10 対）で、試料温度は 14 K である。図中、赤の実線は a 偏光スペクトル、青の実線は b 偏光スペクトルであり、赤及び青で示した垂直の破線はそれぞれの偏光に対応する励起子エネルギー位置を示している。これ

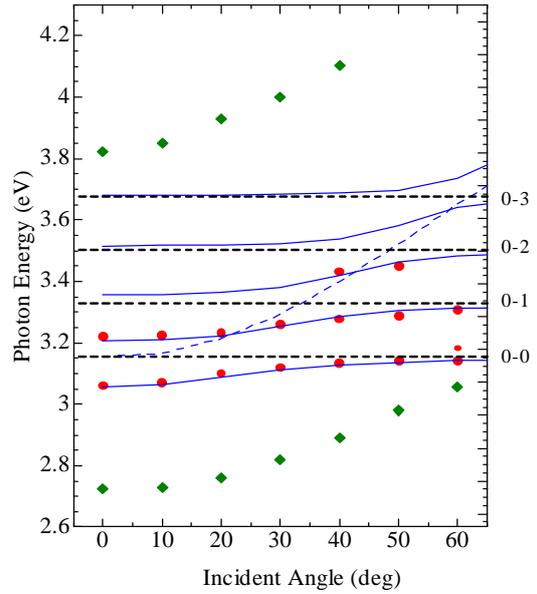


図5 a 偏光キャビティポラリトンモードの入射角依存性。s 偏光配置に相当する。

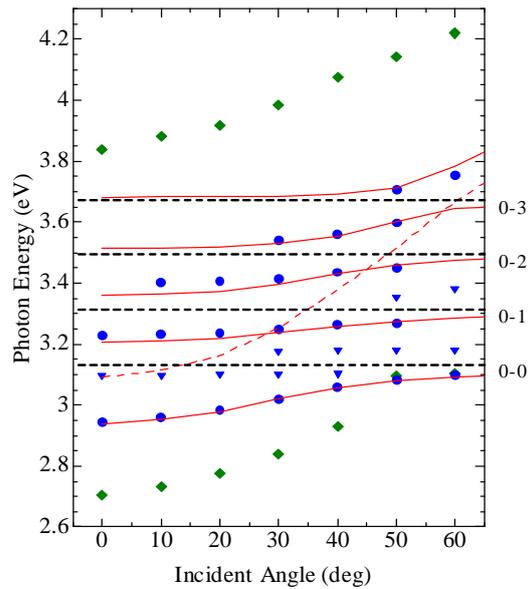


図6 b 偏光キャビティポラリトンモードの入射角依存性。p 偏光配置に相当する。

らはアントラセン分子の全対称振動モード (vibronic mode) と結合した励起子準位である。図3は  $\phi = 90^\circ$ 、即ち a 偏光、b 偏光がそれぞれ s 偏光、p 偏光の配置のものである。図4は  $\phi = 0^\circ$ 、即ち a 偏光、b 偏光がそれぞれ p 偏光、s 偏光の配置のものである。

各透過スペクトル上に現れるピーク構造は入射角の増大とともに高エネルギー側にシフトするが、破線で示されたそれぞれの励

起子準位を挟んで高エネルギー側と低エネルギー側に分裂していることがわかる。これらは典型的なキャビティポラリトンの振舞いであり、図 3, 4 のスペクトル上のピークがキャビティポラリトンモードを表している。図からわかるように、偏光によってモードが完全に2つに分離しており、異方性キャビティポラリトンが明瞭に観測されている。

図 3 と図 4 との比較から、偏光が同じならば結晶軸に対する入射面  $\phi$  が異なってもモードピークのエネルギー位置の違いは数 meV 程度であった。しかしスペクトル形状自体は  $\phi$  によって大きく異なることがわかる。最低励起子準位 (0-0 励起子) より高エネルギー側の構造で明らかなように、s 偏光配置よりも p 偏光配置のほうが入射角の増大とともにモードの透過率が顕著に増大していることがわかる。この振舞いは a 偏光でも b 偏光でも同じであることから、アントラセン結晶に起因するものではなく、DBR からなる微小共振器特有のものと考えられる。実際には DBR の低エネルギー側の edge 構造が p 偏光配置で顕著に高エネルギー側にシフトするため、これが透過率に影響しているものと考えられる。

入射角に対するキャビティポラリトンのモードピークの変化を図 5 及び図 6 にそれぞれ示す。これは図 3 の a 偏光及び b 偏光のスペクトルから求めたものである。図中、水平破線は各偏光に対する励起子エネルギー準位を表す。図から各モードピークは典型的なポラリトン分散を示していることがわかる。図中の緑のプロットは DBR edge のエネルギー位置を表す。前述したように、低エネルギー側の DBR edge は s 偏光配置 (図 5) に比べ p 偏光配置 (図 6) のほうが入射角の増大に対する変化が大きく、0-0 励起子準位に近づいていることがわかる。

図中の破線曲線はこの試料に対して計算されたキャビティモードである。このキャビティモードと励起子準位とが相互作用することでキャビティポラリトンが形成されるので、この相互作用は次のハミルトニアンで記述される。

$$\begin{pmatrix} E_{ph}(\theta) & \Omega_1/2 & \Omega_2/2 & \Omega_3/2 & \Omega_4/2 \\ \Omega_1/2 & E_{ex0-0} & 0 & 0 & 0 \\ \Omega_2/2 & 0 & E_{ex0-1} & 0 & 0 \\ \Omega_3/2 & 0 & 0 & E_{ex0-2} & 0 \\ \Omega_4/2 & 0 & 0 & 0 & E_{ex0-3} \end{pmatrix}$$

ここで、 $E_{ph}(\theta)$  は入射角  $\theta$  に依存したキャビティモードのエネルギー、 $E_{ex0-n}$  は 0-n 励起子のエネルギーを表し ( $n = 0, 1, 2, 3$ )、a 励起子は 3.154, 3.328, 3.503, 3.676 eV、b

励起子は 3.132, 3.311, 3.496, 3.673 eV である。ここでアントラセン励起子は典型的なフレンケル励起子のため  $\theta$  には依存しないとした。 $\Omega_n$  はキャビティモードと励起子との相互作用を表しており、真空ラビ分裂エネルギーと呼ばれる。このハミルトニアンを対角化するとその固有値がキャビティポラリトンとなる。 $\Omega_n$  をパラメータとしてこの固有値が測定結果に一致するようにフィッティングした結果を図中の実線に示す。この結果各真空ラビ分裂エネルギー  $\Omega_n$  は

a 偏光

$$\begin{aligned} \Omega_1 &= 0.15 \text{ eV}, & \Omega_2 &= 0.15 \text{ eV} \\ \Omega_3 &= 0.13 \text{ eV}, & \Omega_4 &= 0.1 \text{ eV} \end{aligned}$$

b 偏光

$$\begin{aligned} \Omega_1 &= 0.28 \text{ eV}, & \Omega_2 &= 0.22 \text{ eV} \\ \Omega_3 &= 0.16 \text{ eV}, & \Omega_4 &= 0.13 \text{ eV} \end{aligned}$$

と求められた。図 3, 4 でわかるように s 偏光配置では高エネルギー側のキャビティポラリトンモードが不明瞭なるため、図 5 の測定値が少ない。そのため図 5 から求められる a 偏光に対する  $\Omega_n$  については誤差が大きくなる。特に  $\Omega_4$  は誤差が大きくなった。しかしながら、いずれの真空ラビ分裂エネルギーも半導体微小共振器のもの比べて 10~100 倍大きい結果となった。特に b 偏光の  $\Omega_1$  については他の有機微小共振器のものに比べても大きい。図 6 に見られるように、低エネルギー側の DBR edge が入射角  $50^\circ$  付近で 0-0 励起子に接近しており、この影響のため b 偏光  $\Omega_1$  の見積もりが大きくなった可能性はある。今回の解析ではキャビティモードと 4 つの励起子準位しか考慮に入れていないが、今後 DBR edge も含めた相互作用を考慮してラビ分裂の見積もりを行う予定である。

図 4 に対してもキャビティポラリトンモードの入射角分散及び真空ラビ分裂エネルギーがそれぞれ求められた。ポラリトンモードの入射角分散は図 5, 6 とわずかに異なっていたが、これは s 偏光と p 偏光とでキャビティモードの分散が若干変化するため、大きな入射角の場合以外はほとんど変わらず、分散から見積もられた真空ラビ分裂エネルギーはほとんど同じであった。このことから、Litinskaya らの理論で予想されたように、異方性キャビティポラリトンであってもその入射角に対する分散は結晶方位に対する入射面  $\phi$  にはほとんど依存しないことが確認された。

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 4 件)

1. 田中修平, 釜保志, 栗巢普揮, 山本節夫, 近藤久雄,  
アントラセン単結晶を用いた微小共振器におけるポラリトンモードの入射角分散, 第 20 回光物性研究会論文集, pp. 381 - 384 (2009), 査読無
2. H. Kondo, K. Tongu, Y. Yamamoto, S. Yamamoto, H. Kurisu,  
Cavity polariton dispersion of a single-crystalline anthracene film embedded in a microcavity, Physica Status Solidi (c), vol. 6 (2009), pp. 284 - 287, 査読有
3. H. Kondo, Y. Yamamoto, A. Takeda, S. Yamamoto, H. Kurisu,  
Optical responses in single crystalline organic microcavities, Journal of Luminescence, vol. 128 (2008), pp. 777 - 779, 査読有
4. 頓宮敬介, 山本幸広, 栗巢普揮, 山本節夫, 近藤久雄,  
アントラセン結晶を用いた微小共振器のキャビティポラリトン分散, 第 18 回光物性研究会論文集, pp. 355 - 358 (2007), 査読無

[学会発表] (計 6 件)

1. 近藤久雄, 田中修平, 釜保志, 山本節夫, 栗巢普揮,  
アントラセン単結晶微小共振器における異方性キャビティポラリトン分散, 日本物理学会第 65 回年次大会, 2010 年 3 月 22 日, 岡山市
2. 田中修平, 釜保志, 栗巢普揮, 山本節夫, 近藤久雄,  
アントラセン単結晶を用いた微小共振器におけるポラリトンモードの入射角分散, 第 20 回光物性研究会, 2009 年 12 月 12 日, 大阪市
3. 近藤久雄, 釜保志, 田中修平, 山本節夫, 栗巢普揮,  
有機単結晶を用いた微小共振器におけるキャビティポラリトンモードの入射角依存性, 日本物理学会 2009 年秋季大会, 2009 年 9 月 25 日, 熊本市

4. 近藤久雄, 頓宮敬介, 山本幸広, 山本節夫, 栗巢普揮,  
有機微小共振器におけるキャビティポラリトン分散 II, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008 年 9 月 22 日, 盛岡市

5. 頓宮敬介, 山本幸広, 栗巢普揮, 山本節夫, 近藤久雄,  
アントラセン結晶を用いた微小共振器のキャビティポラリトン分散, 第 18 回光物性研究会, 2007 年 12 月 15 日, 大阪市

6. 近藤久雄, 山本幸広, 頓宮敬介, 山本節夫, 栗巢普揮,  
有機微小共振器におけるキャビティポラリトン分散, 日本物理学会 2007 年秋季大会, 2007 年 9 月 23 日, 札幌市

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

近藤 久雄 (KONDO HISAO)

愛媛大学・大学院理工学研究科・講師

研究者番号: 70274305

(2) 研究分担者

栗巢 普揮 (KURISU HIROKI)

山口大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号: 0025317

(H19→H20: 連携研究者)

(3) 連携研究者

なし