

PIC-J 会合体を用いた Ag-Ag, Ag-DBR 微小共振器光学特性

小原 祐樹^A, 井上 斗貴子^A, 藤村 倫子^A, 小田 勝^{A,B}, 谷 俊朗^{A,B}

^A東京農工大学大学院 工学府 物理システム工学専攻 ^B共生科学技術研究院

〒 184-8588 東京都小金井市中町 2-24-16

Optical properties of Ag-Ag, Ag-DBR microcavities with PIC-J aggregates

Yuki Obara^A, Tokiko Inoue^A, Tomoko Fujimura^A, Masaru Oda^{A,B}, Toshiro Tani^{A,B}

^ADepartment of Applied Physics, and ^BInstitute of Symbiotic Science and Technology,

Tokyo University of Agriculture and Technology,

Naka-cho 2-24-16, Koganei, Tokyo, 184-8588

Abstract

We report on experimental study of optical strong coupling regime with microcavities composed of two different mirror pairs containing J-Aggregates. One is a pair of Ag mirrors. The other is a combination of Ag and distributed Bragg reflector (DBR). In both cavities we investigated angular dependences of reflectivity at room temperature, and observed giant vacuum Rabi splitting of about 100 meV. These observed splittings are an order of magnitude larger than those for typical inorganic semiconductors.

1. はじめに

近年、波長程度の共振器長を持つ微小共振器中に物質を閉じ込め、量子化された光と物質中の励起子が強結合した共振器ポラリトンの研究が広く行われており、次世代オプトエレクトロニクスデバイス等への応用が期待されている。

我々は、この共振器と物質の結合系において、J 会合体と呼ばれる、有機色素分子が分子間力により複数個会合し、1次元鎖状に自己組織的に形成したもの[1]を用いた J 会合体の励起子は無機半導体に比べて振動子強度が大きく、過去にも D. G. Lidzey らによって室温において J 会合体を用いた微小共振器によりポラリトン生成を示すラビ分裂が観測されている [2]。その大きさは 80 meV で、無機半導体を共振器中に挟んだ、同様の実験での典型的な値と比較して 10 倍程度大きい。一方、我々はこれまでに、シアニン系色素である 1,1'-diethyl-2,2'-cyanine(pseudo-isocyanine, PIC)を用いて J 会合体を束上に凝

集した高次構造であるフィブリル構造を用いた局所顕微分光における一連の研究[3]を行い、フィブリル構造単体でのポラリトン生成の初期過程を示唆する結果を得た。そこで、フィブリル構造 J 会合体を微小共振器中に形成することで、光とより強い相互作用をさせ、新たな光学特性の観測を計画した。

作製する共振器として、2枚の共振器ミラーに Ag を用いるもの(Ag-Ag 共振器)と Ag と誘電体多層膜ミラー(DBR)の対を用いるものを検討した。Ag-Ag 共振器は Ag-DBR 共振器と比較して、室温において大きなラビ分裂が観測されるという報告[4]があり、強結合状態の形成が容易である可能性がある。一方 Ag-DBR 共振器では共振器中に閉じ込められるフォンのモードが制御しやすく[5]、膜厚の制御が困難なフィブリル構造 J 会合体を活性層に作製する上で適した共振器であると考えられる。

今回はフィブリル構造を形成していない PIC-J 会合体を用いて Ag-Ag 共振器と Ag-DBR 共振器の特性を比較した結果を報

告する。

2. 実験

2-1 試料作製

作製した試料の構造を図1に示す。各試料は $\lambda/2$ の波長の光が閉じ込められるように、活性層すなわち J 会合体を含むポリマー層や DBR の各層の厚みを計算し設計した。

Ag-Ag 共振器試料は以下の手順で作製した。まず石英基板の上に Ag を真空蒸着法により、270 nm 蒸着した。次に PIC 色素をメタノールに溶かした溶液を polyvinyl sulfate (PVS) 水溶液に色素濃度が $1.0 \times 10^{-3} M$ となるように溶かしたものをその Ag 上に室温でスピコートして膜厚が 150 nm 程度の活性層を作製した。最後に再び真空蒸着により Ag を約 30 nm 載せた。

一方 Ag-DBR 共振器試料は次のように作製した。まず、石英基板の上に $\lambda/4$ の光学膜厚で 6 ペア SiO_2/TiO_2 を積層することで作製した DBR 上に、上記と同様の色素濃度の溶液を 95° で滴下し 170 nm 程度の薄膜を作製した。最後に再び真空蒸着により Ag を約 30 nm 載せた。ただし、各共振器で PVS の濃度とスピコート時の溶液の温度を変え、溶液の粘性を変えることで活性層の膜厚を制御している。

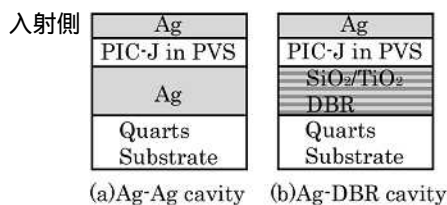


図1. 試料の概略図。各層の膜厚は本文参照。

2-2 測定方法

試料の反射スペクトルを測定するために図2に示したような入射光，検出光を等角に走査できる光学系を構築した。角度を変えて入射すると，共振器中の光の波数ベクトルは，共振器の積層方向に平行，垂直な2成分に分けて考えられる。平行な成分は共振器長 $\lambda/2$ で量子化され，角度走査に関して一定である。一

方，垂直な成分は共振器中での波数 k の垂直入射からの角度を θ とすると，平行な成分 k_{\parallel} は $k_{\parallel} = k \sin \theta$ と表せる。従って共振器へ入射する光の波数は角度 θ によって決まる。これに基づいて光の波数を変えていき，励起子エネルギーと共振器中の量子化された光子エネルギーが共鳴な状態付近での反射特性を観測できる。

角度走査反射スペクトル測定では，ハロゲンランプを光源とし，ファイバーを用いて装置まで導き，試料直前で直線偏光とし，試料表面に集光した。そして，そこからの反射光を対称的な集光光学系で受けて分光し，1次元 CCD により検出を行った。

この光学系では高角度の場合に試料面上のスポット径が，若干広がる。その誤差を最小限にするため，励起子と光子のエネルギーが一致する共鳴角が 30° 付近になるように前述の試料作製条件を決めた。

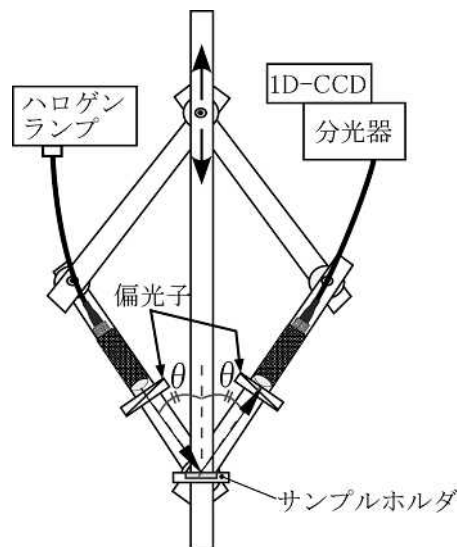


図2. 角度走査反射測定光学系の概略図。

Ag-Ag, Ag-DBR 各共振器について，室温，s 偏光で入射角を 20° から 75° まで 5° 間隔で走査し，共振器に閉じ込められる光子のモードが励起子エネルギーを通過するように測定した。今回の2つの試料においては，光子モードは両共振器ともに 20° において 2.05 eV 付近から 75° では 2.7 eV 付近へ変化している。一方，励起子の吸収エネルギーは角度

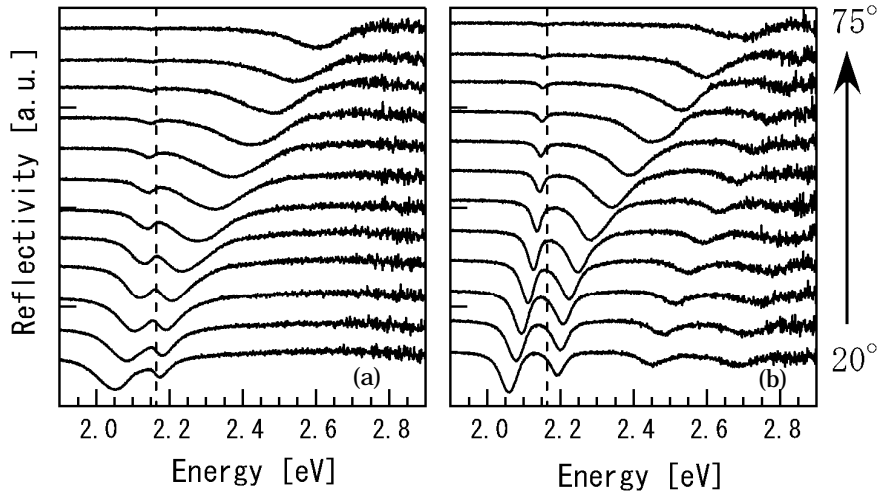


図3 . Ag-Ag共振器の反射スペクトル(a)とAg-DBR共振器の反射スペクトル(b) . 両図ともに20° から75° まで等間隔に表示している . また, 2.16 eVの縦の破線は励起子の吸収エネルギーである .

を変化させても 2.16 eV で一定である .

3. 結果・考察

得られた反射スペクトルの結果を図3に示す . 図3(a),(b)ともに励起子吸収エネルギーを示す破線上にはディップが存在せず, 励起子とは異なる新たな状態共振器ポラリトンが形成されていると考えられる .

共振器ポラリトンの分散関係は光子モードエネルギー E_p と励起子モードエネルギー E_{ex} , その相互作用の大きさを表す真空ラビ分裂量を用いて,

$$E_{U,L} = \frac{E_p + E_{ex}}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{(E_p - E_{ex})^2 + \Delta^2}$$

と表せる[6] . E_U と E_L をそれぞれ上枝ポラリトン, 下枝ポラリトンと呼ぶ . この式で $E_p = E_{ex}$, すなわち光子と励起子のエネルギーが等しい共鳴状態のとき, 右辺第 2 項は最も小さくなり, 元の共鳴エネルギーから $\Delta/2$ 異なる位置に新たな準位が生じる . このことから, Ag-Ag 共振器のスペクトルでは 30° 付近で, Ag-DBR 共振器のスペクトルでは 25° 付近で, 高, 低 2 つのディップが最も近づいているため, 共鳴状態となっていると考えられる .

次に図 3 におけるディップの位置を角度に対してプロットしていくと, 図 4 の分散関係が得られる .

図 4 中の実線は上述の式から描いた理論曲線である . この理論曲線のフィッティングから得られた各共振器での共鳴の位置と, そのときのエネルギーの分裂幅, すなわちラビ分裂量は Ag-Ag 共振器では 32° で約 90 meV, Ag-DBR 共振器では 24° で約 100 meV であった . これらの値は前述の D.G.Lidzey らの報告[2]と同様に無機半導体量子井戸を用いたものと比較して非常に大きな値である . また, 2 つの共振器での差は, 前述の Ag-Ag 共振器のほうが大きなラビ分裂量が観測されるという報告[4]とは異なるものであった . その原因は, PVS に対する PIC 色素濃度が異なることにあると考えている . Ag-Ag 共振器に比べて Ag-DBR 共振器では約 2 倍濃くなっているため, 光子と結合する励起子の単位面積当たりの振動子強度が Ag-DBR のほうが大きい可能性がある . その詳細に関しては当日議論する .

次に図 3(b)のみで見られる高エネルギー側の構造と, (a)と(b)におけるディップの線幅の違いの原因を, 共振器の性質の違いに基づき議論する . 図 5 の (a) と (b) はそれぞれ Transfer Matrix Reflectivity (TMR)モデル[5]により計算した Ag-Ag 共振器又は Ag-DBR 共振器中に活性層の代わりに PVS 薄膜のみを入れた反射スペクトル(入射角 20°, s 偏光)である . 図 5(a),(b)で 2.05 eV 付

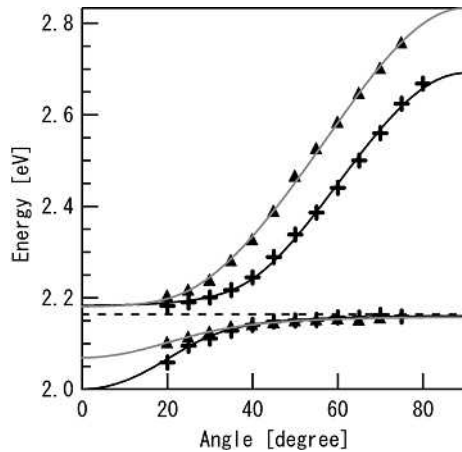


図 4. 反射スペクトルから得た分散関係 Ag-Ag(+), Ag-DBR(-) の比較. 黒の実線は Ag-Ag の, 灰色の実線は Ag-DBR の近似曲線, 破線は励起子モードエネルギー 2.16 eV を示している.

近のディップは、励起子と相互作用していない共振器による閉じ込めによってのみ決まる光子モードである. 図 5(b) の Ag-DBR のスペクトルにおいて 2.3 eV 以上の高エネルギーでのスペクトルからわかるように、図 3 (b) の高エネルギー側で見られる小さなディップは励起子との相互作用には関係しないディップであることがわかる. これは DBR のみの反射スペクトルから、高反射率領域外の反射率特性に起因するものであることを確認した. また、図 5 の両スペクトルを比較してみると、線幅に差が見られる. 線幅は Ag-Ag では約 85 meV, Ag-DBR では約 35 meV である. 対して、J 会合体を含んだ共振器での図 3 のスペクトルも、Ag-Ag で約 100 meV, Ag-DBR で約 50 meV と、この差を反映していることが定性的に見て取れる. 図 3 においてもひとつ注視すべき点は、両共振器での高角度、高エネルギー側におけるディップの線幅の増加である. これは、Ag ミラー自身の反射率にエネルギー依存性があり、高角度においては高エネルギー側のディップが反射率の低下する位置にあることと、高角度側では DBR の高反射波長からディップのエネルギーが外れているため Q 値が低下することによって起きていると考えられる. Q 値が低下するとき線幅が低下することは計算からも確かめられる.

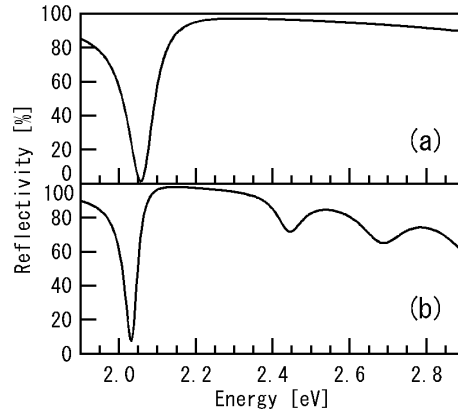


図 5. TMR モデルによる活性層が PVS のみの (a) Ag-Ag, (b) Ag-DBR 共振器の入射角 20° における s 偏光の反射スペクトル.

4. まとめ

本研究では PIC-J 会合体を活性層に用いた共振器長が $\lambda/2$ の微小共振器を、共振器ミラーの片側が Ag を用いたものと、DBR を用いたものの 2 種類作製した. 2 つの共振器のポラリトン特性を観測するため、室温における角度走査反射スペクトル測定を行った. その結果、両共振器共に無機半導体を活性層に用いた同様の実験に比べて 1 桁以上大きな真空ラビ分裂量が観測された. また、共振器構造を起源とすると考えられる線幅の違いが観測された. 両者のラビ分裂量の差は PVS に対する PIC の濃度が異なることによると考えられる. 詳細については当日議論する.

参考文献

- [1] E. E. Jelley, Nature, **138**, 1009-1010 (1936) .
- [2] D. G. Lidzey et al, Phys. Rev. Lett. **82**, 3316 (1999) .
- [3] T. Tani et al, J. Lumin. **122**, 244 (2007) .
- [4] P. A. Hobson et al, Appl. Phys. Lett. **81**, 3519, (2002) .
- [5] G. Panzarini et al, Phys. Solid State, **41**, 1223, (1999) .
- [6] M. S. Skolnick et al, Semicond. Sci. Technol. **13**, 645 (1998) .