

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

頓宮敬介, 山本幸広, 栗巢普揮^a, 山本節夫^a, 近藤久雄
愛媛大学 理学部, 山口大学 工学部^a

Cavity polariton dispersion in a crystalline anthracene microcavity

K. Tongu, Y. Yamamoto, H. Kurisu^a, S. Yamamoto^a and H. Kondo
Department of Physics, Ehime University,

^aDepartment of Advanced Materials Science and Engineering, Yamaguchi University

Abstract

Cavity polariton dispersion in an organic microcavity composed of a single-crystalline anthracene film sandwiched between two distributed Bragg reflectors is investigated by means of the position-resolved transmission measurement using two types of polarized light (a and b polarized directions) at normal incidence on the cavity surface. The peak energy of the cavity polariton mode shifts with move of the irradiated position on the cavity surface, because of the inhomogeneous thickness of the anthracene film. The dispersion relation is obtained as a function of the thickness. From the result of the dispersion curves, the vacuum Rabi splitting energy for the microcavity is estimated to be 200 meV for a -polarized and 340 meV for b -polarized polariton mode, respectively.

1. はじめに

近年、光と強く結合する有機物質を光活性層として用いた有機微小共振器の研究が注目されている[1, 2]。有機微小共振器は大きな Rabi 分裂を示し、室温でも安定にキャビティポラリトンモードが観測できる等、半導体共振器にはない利点を持つ。しかしこれまで報告されてきた有機微小共振器は、活性層である有機色素を透明なホストに分散させたもの[1]や、多結晶性のもの[2]であり、単結晶化したものはほとんどなかった。有機結晶の多くは異方性の強い結晶のため、単結晶化した有機活性層が得られれば、キャビティポラリトンは強い異方性が反映され、等方性結晶の場合にはない特異な光学応答が期待される[3]。我々はこのような点に注目し、アントラセン単結晶を光活性層とする微小光共振器を作製した[4]。

アントラセン結晶は単位胞に 2 個の分子

を含む単斜晶系で、互いに直交する 2 つの結晶軸(a, b 軸)から成る(001)面を有して成長することが知られている。励起子は b 軸に平行な偏りをもつ b 励起子と、 b 軸に垂直な偏りをもつ a 励起子とにダビドフ分裂によって分かれている。 a 励起子は b 励起子に比べ 30 meV 程度高エネルギー側に位置する。この 2 つの励起子により、直交する 2 つの偏光方向にそれぞれ異なるキャビティポラリトンが形成される。

本研究では、アントラセン結晶を用いた微小共振器に対して、実効的にキャビティ長を空間的に変化させることにより、キャビティポラリトンの分散関係を得た。

2. 試料構造

本研究で用いる DBR は石英ガラス基板

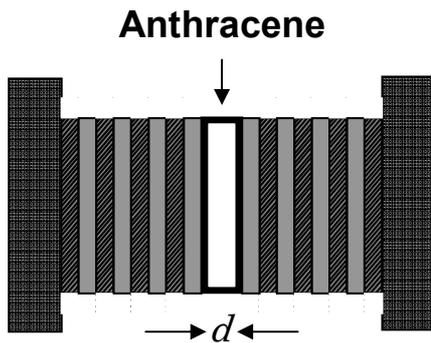


図 1 アントラセン単結晶型微小共振器の構造。アントラセン薄膜単結晶を2つのDBRで挟んでいる。 d はアントラセン結晶厚を表す。

上に HfO_2 と SiO_2 を一組として4組並べた構造をもつ。このDBRを2枚互いに平行に向かい合わせて密着させることでファブリ・ペロー型の微小光共振器を形成する。このときできた隙間にアントラセン融液を浸透させ、単結晶を育成する[5]。この結晶の(001)面はDBR面(誘電体層面)と平行である[6]。図1にこの共振器の断面を示す。アントラセン薄膜結晶の厚さを d とする。また今回用いたDBRは SiO_2 層がアントラセンに隣接ように配列されたものである。

3. 測定結果と議論

図2に4 Kにおけるアントラセン単結晶型微小共振器の垂直入射における偏光透過スペクトルを示す。これらのスペクトルは0.5 mm ϕ の照射ビームを試料面上で数 mm 移動させ、様々な位置で測定したものである。透過率が大きく低下している2.7~3.8 eVの範囲内がDBRのstop bandに相当する。キャビティモードはこの範囲内で透過率がピーク状に増大している部分を指す。この共振器は場所によってアントラセン結晶の厚さ d が変化する。各スペクトルでモードのピーク位置が連続的に変化していくのは、モード位置が結晶厚 d に応じて変化するためである。2つ

の偏光(a, b 偏光)はそれぞれ a, b 励起子活性の偏光方向である。同じ結晶厚でも偏光によってモード位置は異なっていることがわかる。試料面上でビーム位置を数 mm 移動させても偏光の方向は変化せず、異なる偏光モードが混じることもなかった。これは共振器内部のアントラセンが単結晶化していることを意味している。

これらの透過スペクトルから結晶厚 d を決定するために、図1の配置に対して転送行列法[6]によるスペクトルフィッティングを行った。この際、アントラセン結晶をローレンツモデルによる屈折率分散 $n(E)$ 、

$$n(E)^2 = \epsilon_r \left(1 + \frac{2E_T \Delta_{LT}}{E_T^2 - E^2} \right) \quad (1)$$

をもつと仮定した。ここで E は光子エネルギー、 E_T は横波励起子エネルギー、 Δ_{LT} は励起子縦横エネルギー分裂幅、 ϵ_r は背景誘電率を表す。 a, b 偏光におけるこれらの値は、

a 偏光(a 励起子)に対して

$$E_T = 3.154 \text{ eV}, \quad \Delta_{LT} = 19 \text{ meV}, \quad \epsilon_r = 2.4.$$

b 偏光(b 励起子)に対して

$$E_T = 3.122 \text{ eV}, \quad \Delta_{LT} = 51 \text{ meV}, \quad \epsilon_r = 3.2.$$

これらの値を用いてフィッティングを行い、アントラセン結晶厚 d を得た。図2のキャプションに各スペクトルの d の値を示す。

図2からわかるように、 d の減少と共に全てのモードがブルーシフトしていく。ここで、低エネルギー側のモードは E_T 付近までシフトした後、ピーク強度が急激に減少し消滅していく。一方、高エネルギー側のモードは3.2 eV 付近から出現し始め、複雑なスペクトル構造を持ちつつブルーシフトし、3.6 eV 付近から明瞭なモード構造を示し始める。しかし stop band の上限まで来るとモード構造は消滅していく。

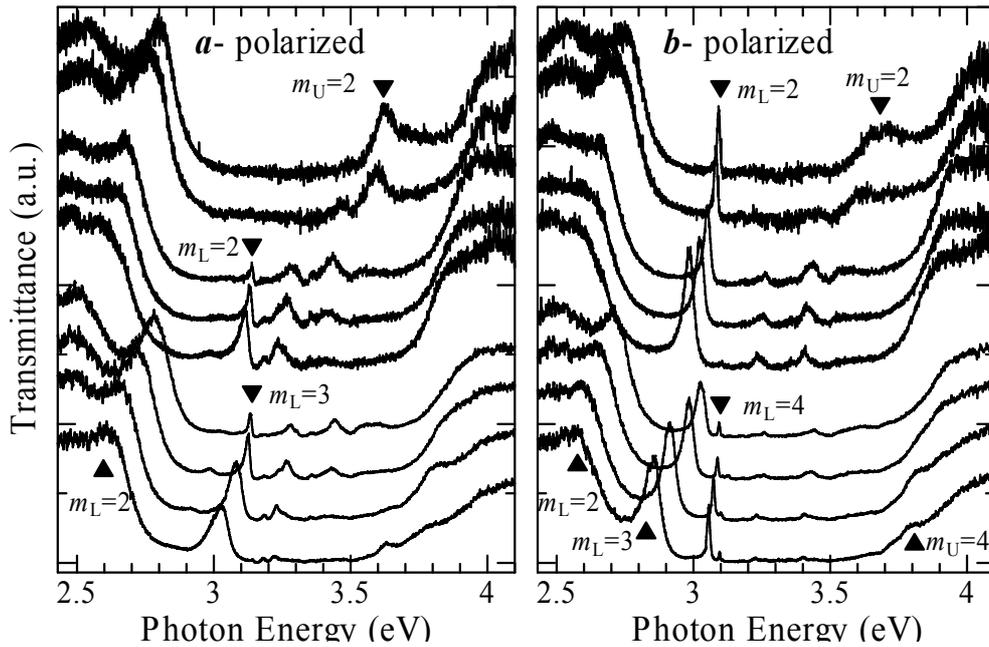


図 2 透過スペクトルの試料面上に位置依存性。試料面に対して全て垂直に光を入射している。試料温度はすべて 4 K。左は **a** 偏光、右は **b** 偏光。 m_U , m_L は Upper, 及び Lower ポラリトンの共振モード次数を表す。転送行列法によって求めた各スペクトルのアントラセン結晶厚 d は **a**, **b** 偏光とも上から順に 0.07, 0.08, 0.10, 0.11, 0.12, 0.20, 0.22, 0.24, 0.26 μm である。

このような振舞いから各モードはキャビティポラリトンと見なされる。各モードは E_T を境に異なる振舞いを示しており、低エネルギー側が Lower ポラリトン、高エネルギー側が Upper ポラリトンに相当する。3.2~3.5 eV の範囲で現れる複雑なスペクトル構造はキャビティポラリトン固有の振舞いではなく外的要因による。即ち、このエネルギー領域に存在するアントラセンの分子振動に伴うサイドバンド吸収帯によるものである。この範囲のスペクトル構造は複雑ではあるものの、 d の減少とともにスペクトルの重心がブルーシフトしている。これは、吸収帯の背後に明らかにポラリトンモードが存在していることを意味している。

図 2 に示された m_L , m_U はそれぞれ Lower, Upper ポラリトンのモード次数である。これらは各モードが共振器による干渉の

条件をもつとして得られる[4]。ある次数をもつ Lower ポラリトンモードが d の減少と共にブルーシフトし E_T 付近で消滅すると、同じ次数をもつ Upper ポラリトンモードが出現している。このことは同一次数をもつポラリトンモードどうしのみが相関をもっていると考えられる。2つのキャビティポラリトンは励起子とキャビティ光子との mixing の結果生じる。そのため互いに相関をもつ。このことから同一次数のポラリトンモードが互いに相関を持ち、 E_T 付近を境にポラリトンを構成する光子と励起子との mixing 振幅の入替えが生じるものと考えられる[2]。図 2 では $m = 2$ のモードで入替えが顕著に見ることができる。

図 3 は **a** 及び **b** 偏光における各モードのピークエネルギー位置をアントラセン結晶厚 d に対してプロットしたキャビティポラ

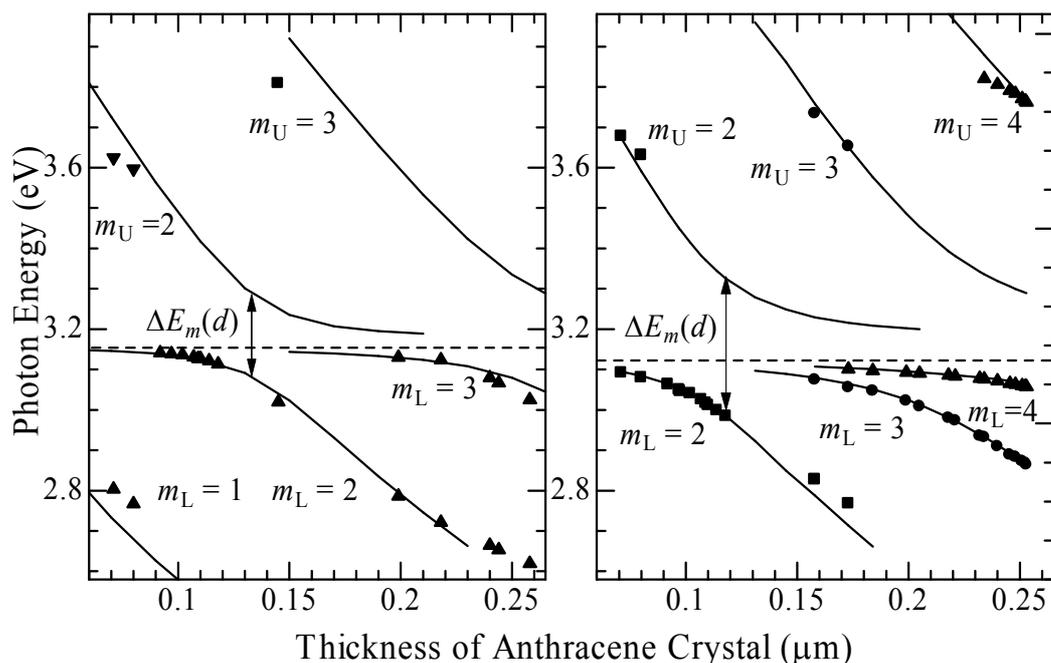


図3 キャビティモードのアントラセン結晶厚依存性。左は **a** 偏光、右は **b** 偏光のもの。実線は転送行列法による計算結果。 m_U , m_L は Upper, 及び Lower ポラリトンの共振モード次数を表す。 $\Delta E_m(d)$ はモード次数 m における Upper モードと Lower モードのエネルギー差であり、結晶厚 d に依存する。破線は横波励起子のエネルギー位置を示す。

リトン分散関係である。図中の実線は転送行列法で計算したモード位置である。測定結果はほぼ計算結果と一致していることが分かる。破線はそれぞれ **a** 及び **b** 励起子に対する横波励起子 E_T の位置である。 E_T を境に明瞭にモードが分裂していることがわかる。前述したように同一次数の Upper 及び Lower ポラリトンが相関を持つため、両モードのエネルギー差 ΔE_m は励起子・光子相互作用の大きさを反映している。図3から明らかなように、 ΔE_m は d に依存している。 ΔE_m の最小値が、共振器の真空 Rabi 分裂幅 $\hbar\Omega$ に一致する。

図3よりモード次数 $m=2$ において、**a** 偏光では $\hbar\Omega = 200$ meV ($d = 0.133$ μm)、**b** 偏光では $\hbar\Omega = 340$ meV ($d = 0.118$ μm) という結果が得られた。横波励起子エネルギーに対する Rabi 分裂幅 $\hbar\Omega/E_T$ は、**a** 偏光で 6.3%、**b** 偏光では 10.9% までに達する。他の有機微小共振器[1, 2]に比べて、この値は **a** 偏光で同等

程度、**b** 偏光では 2 倍程度大きい。アントラセン単結晶による Rabi 分裂幅が大きい理由は、色素分散性の共振器[1]に比べると光活性層が緻密であるため、多結晶[2]に対しては、単結晶のほうが良い励起子状態を実現できるため、光との結合が大きくなると考えられる。

謝辞

本研究遂行に当たり学術振興会科学研究費補助金(基盤(C):19540342)の補助を受けた。

- [1] D. G. Lidzey, et al., Nature 395, 53 (1998)
- [2] R. J. Holmes and S. R. Forrest, Phys. Rev. Lett. 93, 186404 (2004)
- [3] M. Litinskaya, P. Reineker and V. M. Agranovich, phys. stat. sol. (a) 201, 646 (2004)
- [4] H. Kondo, et al., J. Lumi. 119-120, 137 (2006)
- [5] S. Hashimoto and M. Itoh, phys. stat. sol. (b) 165, 277 (1991)
- [6] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics* 6th, New York: Plenum (1980)