BP3T 結晶からの光励起レーザ発振における励起子ポラリトンの関与

Involvement of exciton polaritons in optically pumped lasing from BP3T single crystals

○松尾 匠 [1], 水野 斎 [1], 佐々木 史雄 [2], 柳 久雄 [1]
奈良先端大物質 [1], 産総研電子光技術 [2],
NAIST [1], ESPRIT AIST [2], °T. Matsuo[1], H. Mizuno[1], F. Sasaki[2], H. Yanagi[1]
E-mail: matsuo.takumi.mp2@ms.naist.jp

[概要] 近年、ダイオード構造を用いた電流注入型有機半導体レーザの実現のみならず、トランジスタ素子からの電流注入による狭線化増幅発光が観測されている[1]。その活性層としてロバストで発光収率が大きい thiophene/phenylene co-oligomer (TPCO)の一種である 5,5″-bis(4-biphenylyl)-2,2′:5′,2”-terthiophene (BP3T)が用いられているが、BP3T 単結晶からはこれまでに遅延時間を伴った超蛍光や励起子ポラリトンの振る舞いに類似した協同的発光増幅現象が確認され、他の TPCO 単結晶からもポラリトンレージングの可能性を示唆する特異な発光増幅現象が得られている[2]。以前我々は、光励起下において BP3T 単結晶中での自己共振効果による Fabry–Pérot (F-P)モードレーザ発振を報告したが[3]、このとき振電遷移帯域で複数に異常分裂したレーザ発振スペクトルが観測された。今回、その時間分解発光スペクトル測定を行い、協同的発光増幅現象の特徴であるスペクトル分裂と遅延時間を伴ったレーザ特性を調べた。

[実験と結果] BP3T 単結晶を溶液成長法により作製し、ガラス基板上に転写、風乾した[3]。このサンプルを、フェムト秒パルスレーザ（$\lambda_{2\omega}$ = 397 nm, 150 fs width, 1 kHz）を励起源として光励起し、ストリークカメラを用いた時間分解発光スペクトル測定を行った。励起密度を上げていくと、0-1 帯と 0-2 帯の両方の発光ピークが狭線化増幅し、0-2 帯では励起密度閾値(141μJ/cm^2)直後にほぼ等間隔な縦モード発振を伴いながら複数の帯域に分裂したレーザ発振スペクトルが得られ、励起密度を上昇させるとスペクトルは次第に一つの帯域に収束していった(Fig.2 (a))。0-2 帯発光の時間分解プロファイルは、レーザ発振閾値直後からパルス型に変化し、励起密度 182 μJ/cm^2 において励起時間原点から最大 77 ps の遅延時間を示した。さらに励起密度を上昇させると遅延時間は次第に小さくなり、通常数 ps 程度である誘導放射に伴う遅延時間に近づいた(Fig.2 (b))。我々は、この遅延時間の起源として励起子ポラリトン形成の緩和過程に伴う時間遅れを推定している。高反射率キャビティ中にある有機分子の励起子は、分子振動による散乱を受けて、十 ps 程度から最大数百 ps の時間スケールで励起子ポラリトン状態へ緩和すると考えられている[4]。発表では発振モードスペクトルを用いて算出したエネルギー分散特性から、協同的発光増幅現象の起源を励起子ポラリトンの観点を中心に議論する。

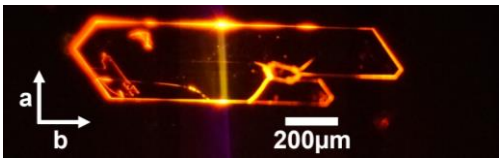

Fig. 1 Fluorescence micrograph of a solution-grown BP3T single crystal.

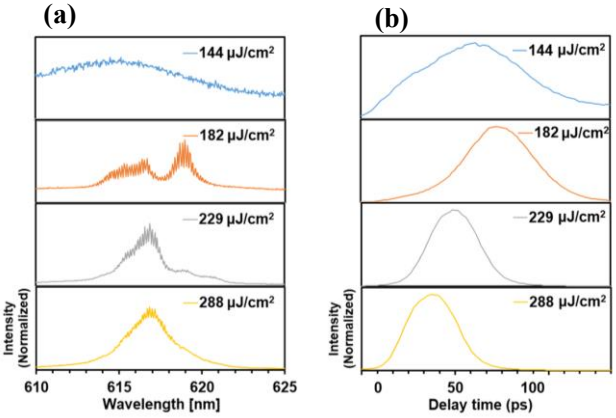

Fig. 2 Excitation density dependences of photo-luminescence spectra (a) and time profiles (b) at 0-2 emission band.

References : [1] T. Kanagasekaran *et al.*, arXiv:1903.08869. [2] H. Yanagi *et al.*, *Adv. Opt. Mater.*, 2019, **7**, 1900136. [3] 松尾ら, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-PA3-20 (2019). [4] P. Michetti *et al.*, *Phys. Rev. B*, 2008, **77**, 195301.