BP4T 単結晶からの遅延時間を伴った光励起レーザ発振

Optically pumped lasing with time delay from single crystals of BP4T

○松尾 匠[1], 佐々木 史雄[1], 柳 久雄[2]

○産総研電子光基礎技術[1], 奈良先端大物質[2]

RIAEP AIST[1], NAIST[2]

E-mail: matsuo.t@aist.go.jp

[概要] 様々な有機半導体材料の中でも Thiophene/phenylene co-oligomer (TPCO)は高電荷移動度と高発光量子収率を併せ持ちレーザ媒質として適する[1]。また TPCO 結晶からは超蛍光やポラリトンレージングに酷似した特異な光励起レーザ特性が報告されており、誘導放射とは異なり励起状態分子間で協同的に発光増幅を起こしていることが指摘されてきた[2]。結晶単体でのレーザ発振を達成する上で、結晶形状が整っており結晶自身が Fabry-Pérot (F-P)共振器として機能するような結晶作製が必要であるが、TPCO 類はあらゆる溶媒への溶解度が低いためにそのような結晶作製には困難が伴う。我々は最近 5,5″-bis(biphenylyl)-2,2′:5’,2″-terthiophene (BP3T)を用いて溶液中でレーザ発振に適した形状の結晶を再現よく作製する手法を見出した[2]。今回同様の方法論を用いて、BP3T よりもさらに分子量が大きく溶解度の低い 5,5”’-Bis(4-biphenylyl)-2,2’:5’,2”:5”,2”’-quaterthiophene (BP4T)を溶液中で結晶化させ、それらの光励起レーザ特性を調べた。

[実験と結果] BP4T 粉末を 190℃の 1,2,4-trichlorobenzene に溶解させた飽和溶液を調製し、これに同溶媒を一定量加え希釈した。その後再び 190℃まで加熱し 15-36 時間かけて 30℃まで徐冷した。徐冷後、平行四辺形の薄板状結晶が多数得られ、これをガラス基板上に転写、乾燥させた。選別した結晶を、ストライプ状に成形したフェムト秒パルスレーザ（$\lambda_{2\omega}$ = 397 nm, pulse width: 150 fs, repetition: 1 kHz）を用いて光励起し、発光スペクトル測定及び時間分解発光スペクトル測定を行った。異なる共振器長(L)をとるように、ストライプビームに対して配置 A, 配置 B という結晶配置下で測定を行った(図 1(a, b))。配置 A, B でそれぞれ L = 106 μm, 182 μm となり、いずれの場合も振電遷移帯の 0-1, 0-2 帯で閾値的に発光強度が増大し、配置 A では閾値以上の光励起密度下(145 μJ/cm^2)において高い共振器 Q 値(≒5600)を示す縦マルチモードを伴ったレーザ発振スペクトルが得られた（図 2(a, b)）。また閾値前後での発光強度の時間分解プロファイルを調べると、0-2 帯における最大遅延時間は配置 A, B でそれぞれ 139 ps, 221 ps であり、誘導放射での数 ps という立上り時間よりも大きな値を示し、遅延時間に対する L 依存性も見られた。これは光励起下における励起分子数依存性を反映しており、すなわち超蛍光に代表されるような励起分子間での協同的発光現象に起因すると見ている[4]。

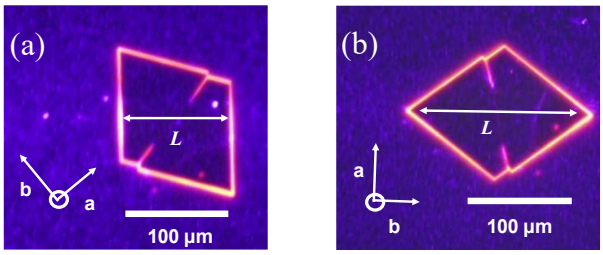


図 1 (a, b) 配置 A, B における BP4T 結晶の蛍光像.

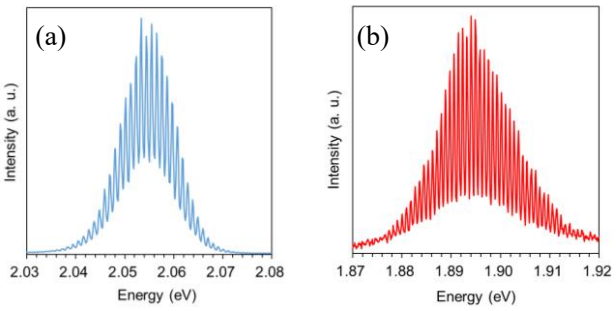


図 2 配置 A において測定した (a) 0-1 帯および(b) 0-2 帯のレーザ発振スペクトル

References: [1] T. Kanagasekaran *et al.*, arXiv:1903.08869, 2019. [2] H. Yanagi, F. Sasaki and K. Yamashita, *Adv. Opt. Mater.*, **7**, 1900136 (2019). [3] 松尾ら, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 8p-Z13-14 (2020). [4] T. Matsuo *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **59**, SDDB02 (2020).

© 2021年 応用物理学会