ナノ秒レーザー励起による有機励起子ポラリトンの室温レージングの試み

Polaritonic Lasing Attempt with Strongly-Coupled Organic Microcavities by Nanosecond Pulse Pumping

東京大学教養学部統合自然科学科 [1]，九州大学大学院工学府 [2]，東京大学大学院総合文化研究科 [1,3]
○(B)山本 真毅 [1]，森山 彰治 [2]，石田 真敏 [2]，古田 弘幸 [2]，深津　晋 [1,3]
Dept. of Integ. Sci., UTokyo [1], Grad. School. of Eng., Kyushu Univ. [2], Grad. School of Arts and Sci., UTokyo [3]
○Masaki Yamamoto[1], Shoji Moriyama[2], Masatoshi Ishida [2], Hiroyuki Furuta [2], Susumu Fukatsu[1,3]
E-mail: yamamoto-masaki677@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

背景と目的：励起子が少数モードの電磁場と強結合した励起子ポラリトンはボゾン統計に従う．Rabi 分裂した分散曲線の底に運動量・エネルギー緩和した励起子ポラリトンは，励起密度が閾値を超えると凝集し，反転分布を要しない特徴的なレージングに至る事が複数，報告されている[1]．蛍光タンパク質(eGFP[2]及び mCherry[3])の例を除き，これらの実験では一貫してフェムト秒・ピコ秒のパルス光励起が用いられてきた．その理由は，高密度励起における励起子ポラリトンどうしの散乱がポラリトン凝縮に逆行するためとされている．eGFP を用いたナノ秒励起のポラリトンレージングの例では，コアシェル的な分子構造が励起子ポラリトン間相互作用を抑制する可能性が指摘されている．cw 励起の室温レージングは究極課題の一つであり，本研究では，構造特異性をもたない有機分子を用いて，ナノ秒パルス励起によるポラリトンレージングの可能性を探った．

実験と結果：有機分子は，大きな励起子束縛エネルギー(>26 meV)を反映して室温でも励起子が安定に存在し，大きな真空 Rabi 分裂が発生する[1]．本研究では，BODIPY[4]の誘導体を用いた．DBR 上に BODIPY 誘導体の PMMA トルエン溶液をスピンコートした後，銀 25 nm を蒸着した非対称共振器の角度分解反射スペクトルを Fig. 1 に示す．比較のため BODIPY なしの例も示した．約 300 meV の真空 Rabi 分裂 (↓)が確認できる．分裂ギャップの左右の構造は，それぞれ DBR と PMMA 内の導波モードである．Fig. 2 は，DBR 上にドロップキャスト後，DBR を圧接した微小共振器のナノ秒 OPO レーザー励起による面垂直方向の蛍光スペクトルである．450 nm 励起において励起子ポラリトンレージングに帰属すべき閾値特性と線幅の狭小化が確認された．一方，電子ラマン遷移と思われる狭線幅のピークも観測されたが，励起依存性が前者とは明確に異なった．

謝辞：パルス光励起実験に関して東京大学の安武裕輔講師に感謝する．

[1] S. Kéna-Cohen and S. R. Forrest, Nat. Photonics, **4,** 371-375 (2010).
[2] C.P. Dietrich *et al.*, Sci. Adv., **2**, e1600666 (2016).
[3] S. Betznold *et al.*, ACS Photonics, **7**, 384-392 (2020).
[4] T. Cookson *et al.*, Adv. Opt. Mater., **5**, 1700203 (2017).

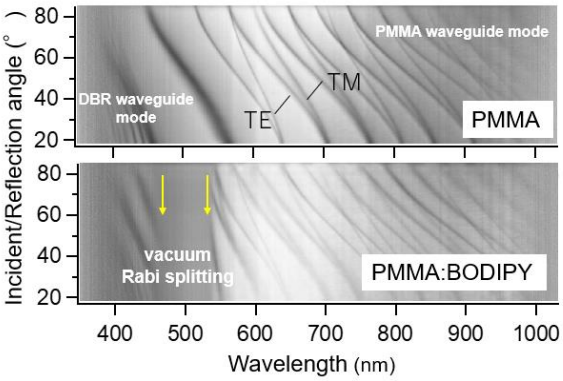

Fig. 1 Angle-resolved reflection spectrum;
up: PMMA, down: PMMA+BODIPY.

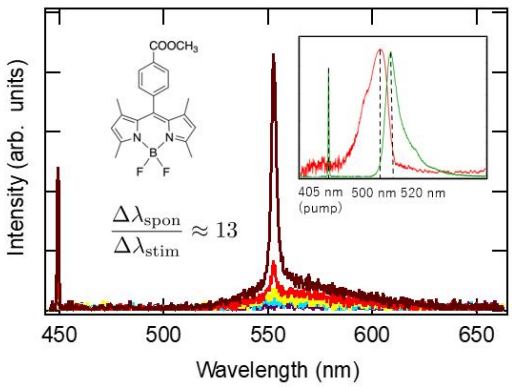

Fig. 2 450nm nanosecond pulse pumped luminescence spectrum;
inset left: structure, inset right: absorption(red) and luminescence(green).