

# Engineering of Exciton-Polariton and Bose-Einstein Condensate in Organic Microcavities

石井, 智大

<https://hdl.handle.net/2324/4784559>

---

出版情報 : Kyushu University, 2021, 博士 (工学), 課程博士  
バージョン :  
権利関係 :

氏 名 : 石井 智大

論 文 名 : Engineering of Exciton-Polariton and Bose-Einstein Condensate in Organic Microcavities  
(有機マイクロ共振器中における励起子ポラリトンとそのボーズ・アインシュタイン凝縮の制御に関する研究)

区 分 : 甲

## 論 文 内 容 の 要 旨

有機分子の一重項励起子と光共振器に閉じ込められた共振モードが強結合することで形成される励起子ポラリトンは室温で Bose-Einstein 凝縮 (BEC)相を示すことが 2010 年に発見された。このポラリトン BEC はレーザー発振の超低消費電力化や室温で駆動する量子コンピューティング技術の実現につながるため、未来社会の新しい基盤技術として注目されている。しかしながら、先行研究で報告されている有機マイクロ共振器中の BEC 凝縮閾値は光励起で  $P_{th} = 11 - 500 \mu\text{J cm}^{-2}$  と高く、電流励起による BEC 転移は未だ確認されていない。そのため、励起子ポラリトンの学理を深化させ更に開拓するために、低閾値で凝縮転移を示す新規分子材料群の開拓とその BEC 転移のメカニズムの解明は必要不可欠な研究課題である。

近年、この BEC の凝縮閾値はポラリトンの形成メカニズムと密接に関係していると考えられている。Lower polariton (LP)に蓄積されるポラリトンの密度は緩和速度 ( $W_{ep}$ ) と放射寿命 ( $\tau_{LP}$ ) の積によって決定されるため、ポラリトンの緩和速度と寿命の増大が BEC の低閾値化に必要である。しかしながら、この高速ポラリトン緩和に必要な分子材料の開拓やまたその薄膜形態に関する研究はこれまで殆ど報告されていない。そこで本博士論文では、ポラリトンの高速緩和に必要な分子材料群の開拓、そのダイナミクスの理解及び BEC 凝縮閾値の低減を目的として研究を行った。

**第一章**では、本博士論文の概要について記述した。励起子ポラリトンとその BEC の歴史について記述し、当該分野の研究状況及びそれに対する課題について述べた。

**第二章**では、マイクロ共振器中における励起子と電磁波の相互作用に関する基礎的な物理について議論した。2.1、2.2 節では Maxwell の電磁力学に基づいて誘電体多層膜ミラーで構成された共振内部での電場のエネルギー分散関係について説明した。2.3 節では共振器内部での古典的な放射メカニズム(Purcell 効果)、2.4 節では励起子と電磁波の相互作用について古典論及び量子論を用いて議論し、励起子ポラリトンを特徴付けるうえで最も重要な Rabi 分裂エネルギーについて説明した。更に、その励起子ポラリトンの分散関係の測定方法についても説明した。

**第三章**では、有機分子を含んだ微小共振器中における励起子と電磁波の強結合状態の物理について議論した。3.1 節では励起子ポラリトンの実験的な報告例、Franck-Condon 近似に基づいた励起子ポラリトンの理論及び励起子リザーバーについて説明した。3.2 節では励起子ポラリトンの緩和メカニズムについて記述し、ポラリトンの占有率がポラリトンの緩和速度 ( $W_{ep}$ ) とその寿命 ( $\tau_{LP}$ ) によって決定されることを明らかにした。3.3 節では Bose-Einstein 凝縮状態の基礎理論について説明し、有機微小共振器中で報告されているポラリトン BEC 材料と凝縮閾値の低減に向けて重要

な因子について議論した。

**第四章**では、高速ポラリトン緩和を示す有機分子材料群を開拓するために、励起状態における分子内電荷移動がポラリトンの緩和メカニズムに与える影響について議論した。具体的には、分子内電荷移動 (CT) 強度の異なる分子材料に着眼し、放射遷移速度がポラリトンの緩和速度に与える影響を明らかにした。その結果、CT の大きさの減少に伴いポラリトンの緩和速度が 2 桁増大することを実証し、ポラリトン BEC の閾値の減少には、励起状態での CT 特性の制御が重要なパラメータの一つであることを示した。

**第五章**では、ポラリトンの緩和速度が BEC 転移の凝縮閾値に与える影響について議論した。特に、BSBCz-EH (4,4'-bis((E)-4-(3,6-bis(2-ethylhexyl)-(9H-carbazol-9-yl))styryl)-1,1'-biphenyl) を含んだマイクロ共振器において、閾値  $P_{th} = 9.7 \pm 0.1 \mu\text{J cm}^{-2}$  でポラリトン BEC を実証した。更に半古典的な時間発展方程式を用いて、その閾値の低減が励起子リザーバーからの高速ポラリトン緩和によって引き起こされることを明らかにした。

**第六章**では、共振器内部の分子の配向性がポラリトンの緩和速度に与える影響を解明するために、homotropic 配向と planar 配向を有する液晶分子 (ペリレン誘導体) を含んだ 2 種類のマイクロ共振器に着眼し、そのポラリトン緩和メカニズムを議論した。その結果、双極子モーメントが面内方向を向いた時の緩和速度は等方的なものと比較して約 2 倍増大していることを実証した。第五章で明らかにしたように、ポラリトンの緩和速度の増大は BEC の凝縮閾値の減少につながるため、本研究結果をとおして分子の配向性制御がポラリトン BEC の凝縮閾値の低減に向けて重要なパラメータの一つであることを明らかにした。

**第七章**では、博士課程で行った研究をまとめ、低閾値で BEC 転移を示す有機分子材料群及びその BEC 転移のメカニズムに関する総括を行った。加えて、ポラリトン BEC の社会実装に向けて、今後解決すべき課題とその方針について記述した。現状、電流励起ポラリトン BEC を阻む課題として、(1) BEC 転移の閾値が未だ高いこと (2) 電荷再結合により 75% の割合で生成する三重項励起子の存在、の 2 点が挙げられる。これらの課題を解決するためには、非放射遷移に起因する分子振動モードの利用による超高速ポラリトン緩和を示す有機材料の開拓や熱活性化遅延蛍光材料 (TADF) 特性を示す有機材料によるスピン三重項励起子のアップコンバージョンを利用したポラリトン BEC 転移の実証が今後必要となる。