有機色素を含む共振器型1次元フォトリック結晶の光学特性

木村 昭博, 中西 俊介, 伊藤 寛, 鶴町 徳昭

香川大学 工学部材料創造工学科 (〒761-0396 高松市林町2217-20)

Optical Properties of Cavity Type One-Dimensional Photonic Crystal
with Organic Dye Molecules

Akihiro KIMURA, Shunsuke NAKANISHI, Hiroshi ITOH, and Noriaki TSURUMACHI

Faculty of Engineering, Kagawa University, 2217-20 Hayashi-cho, Takamatsu 761-0396

(Received August 28, 2009)

We fabricated the cavity type one-dimensional photonic crystal (1D-PC) structure with the defect layer made of polymer film contained several organic dye molecules. In this structure, incident light intensity was strongly confined at the defect layer and mode density of light was greatly enhanced. We confirmed a large enhancement of the degenerate four-wave mixing generation efficiency and successfully observed a large Rabi splitting between upper and lower cavity polariton branches due to the strong exciton-photon coupling in the 1D-PC with dye molecule J aggregate.

Key Words: One-dimensional photonic crystal, Microcavity, Organic dye molecule, Degenerate four-wave mixing, Cavity polariton

1. 序 論

近年, フォトリック結晶(photonic crystal: PC)や微小共振器のような人工的な構造による様々な光学過程の制御に関する研究が盛んに行われている。PCとは関与する光の波長程度の周期で光学定数が変調された媒質であり, 光の存在が禁じられるフォトリックバンドギャップ(photonic band gap: PBG)や光の局在モードの出現などの興味深い性質を持つ光学材料である¹⁾。このフォトリック結晶の性質を利用することで, 無失きのレーザーや微小光集積回路などの新しい光制御デバイスなどの実現が期待されている。特に構造欠陥を有するPCにおいては非常に強い光の局在効果を示すため, 高いQ値を示す微小共振器として振舞うことが良く知られている。このようなPCに対し, フォトリックバンド端や光の局在モードに対応した周波数の光を入射した場合は光電場が大きく増強される。このため, PC内に光学的非線形性を有する物質が存在する場合は, その非線形光学効果が大きく増強されることが良く知られている²⁻⁵⁾。

一方, このようなPCや微小共振器においては光のモード密度が大きく変調されており, このことを利用して自然放出の抑制や増強に関する研究がこれまで行われてきた⁶⁾。PC中に置かれた原子の遷移エネルギーがPBGにあるような場合にはモード密度が0となるため自然放出は禁じられる。一方, 遷移エネルギーがモード密度の高いフォトリックバンド端やフォトリックバンドギャップ内欠陥準位に一致している場合は自然放出確率が大き

く増強される。これはPurcell効果として良く知られている⁷⁾。これまでこのような現象が共振器中の原子はもちろん半導体量子井戸^{8,9)}, 量子ドット¹⁰⁾, 有機分子¹¹⁾, 希土類イオン¹²⁾など様々な凝縮系物質において観測されている。さらに自然放出のみならず熱輻射¹³⁾やラマン散乱¹⁴⁾などの光学過程の抑制や増強も観測されているのに加えて, 最近ではレーリー散乱¹⁵⁾や非線形光学過程¹⁶⁾のPurcell効果についても報告されている。これらは共振器中の光子と原子系との結合が比較的弱い摂動論的な取り扱いができる領域での現象であり, この領域は弱結合領域と呼ばれている。

それに対し, 共振器のQ値がさらに大きくなり両者の結合が強くなってくると, 摂動論的には取り扱えない強結合領域とよばれる領域に入ってくる。この領域では共振器中の光子と原子系が可逆的かつコヒーレントにエネルギーの交換を行うので, 量子光学的なJaynes-Cummingsモデルで扱うことになる¹⁷⁾。これは共振器中の光子と原子系の共鳴連成振動子として考えることができる。その結果, この領域においては共振器中の光子モードと原子系モードが結合し両者が入り混じった混成モードが生じるため, モードの分裂が起こる¹⁸⁾。この分裂したモードのエネルギー差をRabi分裂エネルギーと呼び, 両者の結合の強さを表す。この現象は共振器ポラリトンと呼ばれ, 共振器量子電磁力学の効果の一つとして様々な研究がなされてきた¹⁹⁾。この共振器ポラリトン現象はしきい値が低いポラリトンレーザーや量子もつれ対発生等のオプトエレクトロニクスデバイスへの応用が期待さ

れている。

この共振器ポラリトン効果は様々な物質系で起こりうるが、これまでの研究対象としては原子²⁰⁾あるいは無機系の半導体量子構造^{18,21)}などが中心であり、有機分子系に関する例は比較的少数であった。その理由としては、特にIII-V族系半導体量子井戸などにおいてはスペクトル線幅が1 meV程度とシャープであるのに対し、有機分子系はスペクトルに大きな不均一広がりが存在し、吸収スペクトルや発光スペクトルの幅が数10 meV程度とブロードになってしまうため共振器ポラリトンの観測が困難であると考えられてきたためである。しかし、たとえスペクトル幅がブロードであっても、その物質の振動子強度が大きくなることでRabi分裂エネルギーも大きくなるので、有機色素分子においても共振器ポラリトン観測が可能となる場合がある。これまでボルフィリン分子²²⁾やシアニンJ会合体²³⁾において数10 meV以上の大きなRabi分裂エネルギーをもつ共振器ポラリトン効果が観測されている。この値はIII-V族系半導体量子井戸におけるRabi分裂エネルギーをはるかに凌駕しており、光子と原子系の間に非常に強い結合があることがわかる。この有機色素分子における共振器ポラリトン効果は室温においても観測できるため、今後さらなる研究の進展が期待できる。

有機色素分子は着色塗料や蛍光体はもちろん光記録、有機ELなどに利用されており、近年では色素増感太陽電池などへも応用されている極めて汎用性の高い光学材料である。またフォトンクス技術を支える高効率非線形光学材料としても大いに期待されている物質である。さらに有機色素分子を含むポリマー薄膜は通常の無機半導体と異なりフレキシブル性に富んでおり、加工のしやすさなど多くのメリットがある。これらのことから我々は有機色素分子とPCあるいは微小共振器を組み合わせた系に着目し、非線形光学効果や共振器量子電磁力学の効果について調べている。

PC構造中の有機色素分子の光学特性を研究するにあたり、我々は1次元方向に誘電率が変調された共振器型の1次元PC(1D-PC)を用いた。PC構造においては誘電率を変調する次元によってその特性や目的が異なる。自然放出の制御のためには光が3次元的な方向にも伝搬が禁じられるPBGを持つ3次元PC構造が望ましい。一方、レーザー光のような平面波に近い光線の制御を考える場合は必ずしも3次元構造を必要とはせず、伝搬方向のみに誘電率が変調されている1D-PC構造で十分である。さらに光電場の増強を利用した非線形光学効果の増強のためにはむしろ1D-PC構造が適している。なぜならば、1D-PC構造では入射光の閉じ込めが最も有効に行えるからである。また可視光波長程度の周期で3次元的に誘電率が変調された3次元PCの作製は現在もなお困難であるのに対して、誘電体多層膜に代表される1D-PCは有機色素分子の導入という点も含めて試料作製が容易であるというメリットをもっている。

一方、共振器ポラリトン現象を観測するためには共振器のQ値を高くすると共に、モード体積をできるだけ小

さくすることが必要とされている。そのため、1次元系で共振器構造を作る場合、共振器を構成するミラーとしてはモードがサンプル全体に広がる誘電体多層膜ミラーよりむしろ金属ミラーの方が良い²⁴⁾。しかし、本研究で用いたような誘電体多層膜構造型の1D-PCの場合、周期的多層膜部分の材料や周期数を変えることでQ値を簡単にコントロールできるというメリットもある。

これらを鑑みて有機色素分子を含む共振器型1D-PC構造を作製し、その光学特性を調べた。以下、第2節ではサンプルの構造および作製法について述べる。第3節では共振器型1D-PC構造による縮退四光波混合光の発生効率の増強について述べる。この過程は3次の非線形光学効果の一種であり、位相共役光の発生や光演算に利用されている。この効率を高めることは将来の実用化に耐えうるフォトンクス技術実現のための大きな課題の一つである。第4節においては共振器型1D-PC構造による有機分子J会合体における共振器量子電磁力学効果について述べる。今回、ボルフィリン系分子のJ会合体における共振器ポラリトンの観測に成功したのでそれを報告する。そして第5節において全体をまとめ、今後の展望について述べる。

2. 構造

本節では我々の用いた有機分子を含むポリマー薄膜を欠陥層とする1D-PC構造について述べる。1D-PCとは屈折率が光の波長程度の周期で1次元方向に変調された構造であり、屈折率の異なる2種類の薄膜を周期的に積層することで周波数幅の広いPBGを有する1D-PCを作製することができる。このとき、それぞれの薄膜の光学膜厚がある波長 λ の1/4となるように設計すると、PBGの中心周波数に対応する波長が λ となる。一方、周期を乱すような構造欠陥を設けることでPBG中に光の局在モードを作ることができる。例えば、Fig. 1 (a)に示すように構造の中央に光学膜厚が $\lambda/2$ となる層を挿入すると、Fig. 1 (b)に示すような透過スペクトルが得られる。これによると幅広いPBGが見られると同時に、その中心周波数に鋭い透過ピークが出現しており、このピークが光の局在モードに対応している。

本研究ではこの欠陥層として有機色素分子を含むポリマー薄膜を用いている。このとき欠陥層中の有機色素には吸収があるものとする。このような場合、光の局在モードに対応する周波数における透過ピークの透過率は特性行列の手法により

$$T = \frac{4}{\left| -2 \cosh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) - \sinh\left(\frac{\pi\kappa}{n_x}\right) \left\{ \frac{n_g(-n_H/n_L)^{2N}}{n_x + i\kappa} + \frac{n_x + i\kappa}{n_g(-n_H/n_L)^{2N}} \right\} \right|^2} \quad (1)$$

のように表すことができる²⁾。ここで、 n_L , n_H , n_x および n_g は低屈折率層、高屈折率層、欠陥層および基板の屈折率で、 κ は欠陥層の消衰係数、 N は欠陥層の両側にあ

Fig. 1 A schematic illustration of a cavity type 1D-PC structure (a) and its calculated transmission spectrum (b).

る周期的多層膜部分のそれぞれの周期数を表している。この計算では欠陥層は構造の中央にあり、両側にある周期的多層膜部分は同じものとしている。

また、欠陥層中央における光強度の増強度は

$$G = \frac{1}{2} \frac{n_x}{\pi \kappa} \sinh\left(\frac{\pi \kappa}{n_x}\right) \times T \left[\cosh\left(\frac{\pi \kappa}{n_x}\right) \left\{ \left(-n_L/n_H\right)^{2N} + \frac{n_g^2 (-n_H/n_L)^{2N}}{n_x^2 + \kappa^2} \right\} + 2 \sinh\left(\frac{\pi \kappa}{n_x}\right) \frac{n_g n_x}{n_x^2 + \kappa^2} \right] \quad (2)$$

と計算できる。ここで $(n_H/n_L)^N \gg 1$, $n_x \gg \kappa$ を仮定すると、透過ピークの透過率を示す式(1)と欠陥層における光強度の増強度を示す式(2)は以下のように近似できる。

$$T = \frac{4}{\left[2 + \frac{\pi \kappa}{n_x} \left(\frac{n_H}{n_L} \right)^{2N} \right]^2} \quad (3)$$

$$G = \frac{T}{2} \left(\frac{n_H}{n_L} \right)^{2N} \quad (4)$$

本研究においては低屈折率層としてSiO₂、高屈折率層としてTiO₂を用いており、 $n_L = 1.46$, $n_H = 2.35$ である。この場合、この近似は $N \geq 3$ のときに十分正しい。これより $\kappa = 0$, $N = 5$ の場合は光強度の増強度 G は約60, $N = 10$

の場合は約7000となる。

このような構造を作製する方法としては分子線エビタキシー法や真空蒸着法など様々あるが、ここでは本研究で用いた有機分子ポリマー薄膜を中央の欠陥層とする共振器型1D-PC構造のサンプル作製法について述べる。まず、通常の真空蒸着法などの手法で作製した周期的誘電体多層膜を2つ用意する。このとき周期的多層膜はその目的に応じた反射率を有するミラーとして用いている。これらのうちの一方に有機色素を含むポリマー薄膜をスピンコート法により製膜する。このとき、膜厚は所望の値より少々厚めに製膜しておく。そしてもう片方の多層膜を向かい合わせて張り合わせ、自作のサンプルホルダーにより両側から応力を加えて一体構造とする。この際、膜厚ができるだけ均一になるように干渉縞などを観察しながら応力を調整することで、所望の膜厚を有する欠陥層を含む1D-PCを作製できる。無論、分子線エビタキシー法や真空蒸着法のような高い精度のサンプル作製は望めないが、入射光の照射範囲では十分なフィネスや透過率を持つ共振器構造を得ることが可能である。この素子作製手法には、欠陥層の厚さや色素分子の濃度を変えることで透過ピークの波長やピークの透過率などを変化させることができるというメリットがあるが、共振器構造のQ値が高くなるにつれサンプルの作製は技術的に難しくなってくる。ただし、高価な作製装置が不要で作製条件も緩やかなため、材料の選択幅も非常に大きいという特徴もあり、本研究で用いたQ値100程度のサンプルの場合はこの手法で得られる精度で十分である。

3. 縮退四光波混合光発生効率の増強

3次の非線形光学効果の一種である縮退四光波混合の発生効率の増強効果を調べるために、キサンテン系有機色素エオシンYを単分散させたpoly-vinyl alcohol (PVA) 薄膜を欠陥層とする1D-PCを作製した。このとき欠陥層の両側にあるSiO₂/TiO₂による周期的多層膜部分の周期数は5とし、各層の膜厚は488 nm/4とした。またPVAに対するエオシンYの濃度は 3.5×10^{-2} mol/lであった。Fig. 2に作製した1D-PCの透過スペクトルとエオシンY分子を

Fig. 2 Transmission spectrum the cavity type 1D-PC and absorption spectrum of the eosin Y/PVA film.

単分散させたPVAフィルムの吸収スペクトルを示す。1D-PCの透過スペクトルは実線で、エオシンYの吸収スペクトルは破線でそれぞれ示す。フォトニックバンドギャップ中の透過ピークはそれぞれ欠陥による光の局在モードに対応しているが、欠陥層の光学膜厚が $\lambda/2$ 以上であるため何本も出現している。透過スペクトルから算出した欠陥層の光学膜厚は 5λ 程度であった。このとき、エオシンYの吸収が大きい領域における透過ピークでは透過率が減少しており、吸収が小さくなるにつれてピークの透過率も増加していく。本実験において入射光はQスイッチYAGレーザーの第二高調波を用いているので、波長532 nmに対応する2.33 eVの透過ピークのみを考えればよい。この2.33 eVに出現している透過ピークの透過率は約10 %であった。この場合、式(3)、(4)からわかるように吸収のため欠陥における光強度の増強度も減少するが、それでも5倍以上の増強が期待できる。

このサンプルに対し、3つの異なる波数ベクトル k_1 , k_2 , および k_3 を持つ光を入射し、 $k_1 + k_2 - k_3$ 方向に出射する縮退四光波混合信号光強度を測定した。このとき、入射光はすべて同じ方向の直線偏光であり、サンプルに対し3つの入射光および信号光がすべて同じ角度となるようにボックスカー配置にして実験を行った。また本実験においては比較のために、エオシンYを単分散させた単なる裸のPVAキャストフィルムも作製し同様の実験も行った。この裸の試料は多層膜ではなくガラス基板に1次元フォトニッククリスタルの時と同様な条件で成膜し、それらを張り合わせ応力をかけて作製した。この裸の薄膜の透過率は90 %であった。我々の行った理論計算によると²⁾、1D-PCにおける縮退四光波混合発生強度は透過ピークの透過率を T とした場合

$$W_{1D-PC} = \frac{9}{16} \left(\frac{n_H}{n_L} \right)^{4N} T^3 (1 - \sqrt{T})^2, \quad (5)$$

となる。それに対し、裸の色素薄膜では

$$W_{naked} = \frac{1}{4} T (1 - T)^2, \quad (6)$$

となる。今回のサンプルにおいてはそれぞれの透過率は1D-PCでは10 %, 裸の色素薄膜では90 %であるので、 $W_{1D-PC}/W_{naked} = 1300$ 倍の増強効果が期待できる。

Fig. 3に実験結果を示す。横軸は入射光強度、縦軸は発生した縮退四光波混合信号光強度を示している。黒丸は1D-PC、白丸は比較のため用いた裸の有機色素薄膜である。1D-PCの方が低い入射光強度で信号光が観測できており、同じ入射光強度で比較すると約1000倍の信号が発生している様子がわかる³⁾。これは理論的な予測である1300倍と良い一致を示している。この実験により1D-PCにおける縮退四光波混合光の発生効率の増大が確認できた。

上で述べた縮退四光波混合以外にも、我々はこれまでに吸収飽和³⁾や二光子吸収²⁵⁾などの非線形光学効果の増強にも成功している。これらのことから有機色素を含む1D-PCは高効率の非線形光学素子として有用であるといえる。

Fig. 3 Dependence of the light intensity generated by degenerate four-wave mixing on the incident light intensity for the cavity type 1D-PC and for the naked film.

4. 共振器ポラリトン

共振器量子電磁力学的効果である共振器ポラリトン現象を観測するために有機色素分子を欠陥層に含む1D-PCを作製した。この実験では、欠陥層中の有機分子系としてポルフィリン系色素Tetraphenyl porphine tetrasulfonic acid (TPPS)のJ会合体を用いた。J会合体とは分子が自己組織的に結合し、1次元鎖を形成している状態である。このとき分子の双極子相互作用により励起状態の分裂が起こる。このとき分子の1次元配向軸と各構成分子の遷移双極子モーメントが平行になっているものをJ会合体と呼んでおり、分裂した励起状態のうち低エネルギー側が基底状態と許容遷移となる。このため分子の単量体と比べて吸収バンドのレッドシフトが起こる²⁶⁾。Fig. 4に2種類の濃度の異なるTPPSを含むPVA薄膜の吸収スペクトルを示す。図の(a)においては濃度 $c = 1 \times 10^{-3}$ Mであり、(b)では $c = 2 \times 10^{-3}$ Mである。(a)はTPPS単量体の吸収スペクトルを示しているのに対し、(b)においては2.5 eV付近に新たにシャープなピークが存在していることが確認できる。これはJ会合体を形成していることを意味している。励起の非局在化によって分子の不均一性が平均化されて不均一広がりが増加するため、(a)のmonomerの場合に比べて線幅の狭い吸収ピークが観測できるが、このような鋭い吸収ピークのことをJ吸収帯と呼ぶ。

共振器ポラリトンを観測するためには微小共振器としてのQ値や共振層に挿入する色素の吸収量などを適切な値にすることが必要である。まず始めに微小共振器のQ値について考察した。ミラー部分の周期数を大きくすると反射率が高くなり、それに伴いQ値も増加する。しかし、高いQ値を実現するためには向かい合わせる多層膜ミラーの平行度を高める必要があり、Q値が高くなれば

Fig. 4 Absorption spectra of (a) the monomer and (b) the J aggregate of TPPS/PVA.

なるほどサンプル作製上、技術的困難が伴う。一方、周期数を少なくしすぎると微小共振器のQ値が小さくなり共振器ポラリトンを観測することができないというジレンマがある。これらのことを考慮し、ミラー部分の周期数を決定する必要がある。過去の文献において片側ミラーの反射率が0.98程度の微小共振器において共振器ポラリトンが観測された例²²⁾があるので、その値を参考にした。本研究ではミラー部分にSiO₂とTiO₂からなる誘電体多層膜を用い、その周期を6.5とした。この場合の反射率は0.99程度となり共振器ポラリトンの観測が可能であると考えた。次に共振層に挿入したTPPS-J会合体/PVA薄膜の吸収量を考察した。色素薄膜の消衰係数 κ と共振ピークの透過率の関係は式(3)で与えられる。ここで、 n_L はSiO₂の屈折率1.46、 n_H はTiO₂の屈折率2.35、そして n_X は共振層に挿入したTPPS-J会合体/PVA薄膜の屈折率1.5としている。共振ピークの透過率が0.1以下だと共振ピークが観測しにくいと考え、本研究では消衰係数 κ を0.003以下(共振ピークの透過率0.16以上)になるようにTPPS-J会合体/PVA薄膜の濃度を決定した。サンプルはSiO₂とTiO₂を6.5周期積層させた誘電体多層膜上にスピコート法を用いてTPPS-J会合体/PVA薄膜を塗布し、もう一つの誘電体多層膜で挟み込むことで作製した。サンプル全体の層配列は(LH)⁶LXL(HL)⁶となっている。

このサンプルの透過スペクトルの入射角依存性を調べた。ハロゲンランプを光源とした光をサンプルに集光し、分光器により透過光を分光したあとCCDカメラでスペクトル検出した。この光学系における分光器は回折

格子600 lines/mm、分解能は0.26 nmである。ここで、ハロゲンランプからの光をサンプルに対し入射角0°から光が透過しなくなる角度まで0.5°刻みで傾けた。測定は全て室温にて行った。同様に共振層にPVA薄膜のみを用いた微小共振器の共振ピークエネルギーの入射角依存性を測定し、吸収がない微小共振器の共振ピークエネルギーの入射角依存性がどのようなになるかも調べた。微小共振器への入射角を大きくすると光局在モードは高エネルギーシフトするが、共振器の光局在モードとJ会合体の吸収が周波数的に一致したときに共振器ポラリトンが形成され、モードの分裂が観測されることが考えられる。

Fig. 5にTPPS/PVA薄膜を欠陥層とした1D-PCの透過スペクトルを示す。入射角を増加するにつれて共振モードに対応する単一の透過ピークが単調に高エネルギーシフトしていくが、入射角16°のときには2.46 eV付近にそのピークが観測できる。しかしさらに入射角を大きくすると高エネルギー側にもう一つのピークが新たに出現し、入射角20°の時には明瞭なダブルピークが観測できる。さらに入射角を大きくすると低エネルギー側のピークが消失していき、入射角24°のときには2.6 eVにのみピークが観測できる。このようにはじめ1つだけだった透過ピークが2つに分裂し、最後には単一ピークに戻るという様子が観測できた。

Fig. 5 Transmission spectra of the cavity type 1D-PC with the J aggregate for the incident angle of (a) 16, (b) 20 and (c) 24 deg.

この際、欠陥層の光学膜厚が大きい場合、複数の局在モードが生じ、透過ピークが複数観測される場合がある。このような場合と、共振器ポラリトンに起因したピーク分裂とを区別する必要がある。Fig. 5 (a)においては2.46 eVおよび2.69 eVにピークが観測され、その間にはない。J吸収帯の吸収が2.52 eVにあり、この近辺では吸収が大きいので仮にピークがあっても観測が困難であるが、比較的吸収が少ない2.55 eVより高エネルギー側においてもピークは観測されていない。これらのピークはエネルギー軸上で等間隔に現れるので、光局在モードとしてはこのエネルギー領域内では上述の二つと判断できる。すなわち、今回観測したダブルピークは複数の局在モードによるものではなく、共振器ポラリトンに起因するものと判断できる。

これらの透過スペクトルの入射角依存性をFig. 6にまとめた。黒丸がTPPS/PVA薄膜を欠陥層とした1D-PCの共振モードに対応する透過ピークエネルギーを入射角の関数でプロットしたものである。また、単なるPVA薄膜を欠陥層とした吸収のない1D-PCの光の局在モードに対応する透過ピークも同様に測定したが、その結果を実線で示す。2.53 eVの破線はTPPS-J会合体のJ吸収帯のエネルギーを示しており、これは入射角依存性がないものとしている。色素なしの場合、透過ピークエネルギーは入射角を大きくするに従い単調にブルーシフトしている。一方、J会合体を含む場合は透過ピークの入射角依存性のグラフは2つに分枝されている。これはUpperポラリトンとLowerポラリトンの2つにスプリッティングしていることを意味し、このことから共振器ポラリトンが観測できたと考えられる。また、光の局在モードに対応する透過ピークとTPPS-J会合体の吸収ピークが共鳴している角度である17°におけるUpperポラリトンとLowerポラリトンとのエネルギー差であるポラリトンスプリッティングエネルギーは79.4 meVであった。これは化合物半導体などに比べて約1桁程度大きな値であり¹⁸⁾、しかも室温においても観測できていることからポルフィリン系色素であるTPPS-J会合体のRabi周波数が極めて大きいことがわかる。このように有機色素J会合体を含む1D-PCにおいて共振器ポラリトン形成に伴う明瞭な透過ピークの分裂を室温において観測することに成功した。

5. まとめ

スピコート法を用いて有機色素分子を欠陥層とする共振器1D-PC構造を作製した。まず2種類の有機色素分子を用いて1000倍にも及ぶ縮退四光波混合光の発生効率の増大を観測した。次に、有機色素J会合体を用いて共振器ポラリトン形成に伴う透過ピークの分裂を室温において観測した。このとき得られたRabi周波数は79.4 meVと化合物半導体系と比べて一桁程度大きな値であり、共振器中の光子と物質系の間の結合が非常に強いことが分かる。

本研究で用いたサンプルの場合、周期的多層膜部分の物質や周期数などを変える事で所望のQ値を持つ微小共

Fig. 6 Dependence of the peak energy transmitted through the cavity type 1D-PC on the incident angle.

振器構造を作製できるメリットがあり、非線形光学効果の増強度の向上や共振器量子電磁力学効果の系統的な研究を行うことができる。また、本研究ではスピコート法による簡便な方法でサンプルを作製しており用いる材料の自由度も融通無碍なので、今回用いた有機色素分子以外に化学合成量子ドットなども利用することが可能である。さらに近年、周期的多層膜部分もスピコート法で作製したという報告もあり²⁷⁾、スピコート法のみで構造全体をモノリシックに作製することも可能である。この周期的多層膜部分の材料としては、通常用いられるSiO₂、TiO₂などの無機ガラスはもちろんのこと有機高分子膜²⁸⁾をも用いることができる。今回は二つの誘電体多層膜を張り合わせることで一体型の共振器型1D-PCを作製していたが、このようなサンプル作製法を利用することで、均一性の向上やQ値がより高いサンプルの作製も可能となり、今後様々な研究の発展が期待できる。

参考文献

- 1) K. Inoue and T. Ohtaka (Ed): Photonic Crystals: Physics, Fabrication, and Applications (Springer, Berlin, 2004).
- 2) T. Hattori, N. Tsurumachi, and H. Nakatsuka: J. Opt. Soc. Am. B **14** (1997) 348.
- 3) N. Tsurumachi, S. Yamashita, N. Muroi, T. Fuji, T. Hattori, and H. Nakatsuka: Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) 6302.
- 4) J. Hwang and J. W. Wu: Opt. Lett. **30** (2005) 875.
- 5) R. Buhleier, V. Bardinal, J. H. Collet, C. Fontaine, M. Hübner, and J. Kuhl: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 2240.
- 6) E. Burstein and C. Weisbuch (Ed.): Confined Electrons and Photons (Plenum Press, New York, 1995).
- 7) E. M. Purcell: Phys. Rev. **69** (1946) 681.
- 8) H. Yokoyama, K. Nishi, T. Anan, H. Yamada, S. D. Brorson, and E. P. Ippen: Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 2814.
- 9) Y. Yamamoto, S. Machida, Y. Horikoshi, K. Igeta, and G. Björk: Opt. Commun. **80** (1991) 337.
- 10) C. B. Poitras, M. Lipson, H. Du, M. A. Hahn, and T. Krauss: Appl. Phys. Lett. **82** (2003) 4032.
- 11) R. H. Jordan, L. J. Rothberg, A. Dodabalapur, and R. E. Slusher: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 1997.
- 12) A. M. Vredenberg, N. E. J. Hunt, E. F. Schubert, D. C. Jacobson, J. M. Poate, and G. J. Zydzik: Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 517.
- 13) S. Y. Lin, J. G. Fleming, E. Chow, J. Bur, K. K. Choi, and A. Goldberg: Phys. Rev. B, **62** (2000) R2243.
- 14) F. Cairo, F. De Martini, and D. Murra, Phys. Rev. Lett. **70** (1993)

- 1413.
- 15) A. Mazzei, S. Götzinger, L. de S. Menezes, G. Zumofen, O. Benson, and V. Sandoghdar: *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007) 173603.
- 16) P. Bermel, A. Rodriguez, J. D. Joannopoulos, and M. Soljačić: *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007) 053601.
- 17) E. T. Jaynes and F. W. Cummings: *Proc. IEEE*, **51** (1963) 89.
- 18) C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, and Y. Arakawa: *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992) 3314.
- 19) Y. Yamamoto, F. Tassone, and H. Cao: *Semiconductor cavity quantum electrodynamics* (Springer, Berlin, 2001).
- 20) R. J. Thompson, G. Rempe, and H. J. Kimble: *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 1132.
- 21) T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin and D. G. Deppe: *Nature* **432** (2004) 200.
- 22) D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, M. S. Skolnick, T. Virgili, S. Walker, and D. M. Whittaker: *Nature* **395** (1998) 53.
- 23) D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, T. Virgili, A. Armitage, and M. S. Skolnick: *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 3316.
- 24) P. A. Hobson, W. L. Barnes, D. G. Lidzey, G. A. Gehring, D. W. Whittaker, M. S. Skolnick, and S. Walker: *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002) 3519.
- 25) J. Y. Ye, M. Ishikawa, Y. Yamane, N. Tsurumachi, and H. Nakatsuka: *Appl. Phys. Lett.* **75** (1999) 3605.
- 26) A. S. Davydov: *Theory of molecular exciton* (Plenum, New York, 1971).
- 27) R. M. Almeida and A. S. Rodrigues: *J. Non-cryst. Solids* **326&327** (2003) 405.
- 28) T. Komikado, A. Inoue, K. Masuda, T. Ando, and S. Umegaki: *Thin Solid Films* **515** (2007) 3887.