



**TURUN
YLIOPISTO**

Ultravahvasti kytkeytyneet eksitoni-polaritonit ja niiden sovelluksia

Materiaalitekniikka
Kandidaatintutkielma

Laatija:
Joel Lehtonen

14.05.2025
Turku

Turun yliopiston laatu järjestelmän mukaisesti tämän julkaisun alkuperäisyys on tarkastettu
Turnitin OriginalityCheck -järjestelmällä.

Kandidaatintutkielma

Oppiaine: Materiaalitekniikka

Tekijä(t): Joel Lehtonen

Otsikko: Ultravahvasti kytkeytyneet eksitoni-polaritonit ja niiden sovelluksia

Ohjaaja(t): Tutkijatohtori Olli Siltanen

Sivumäärä: 25 sivua

Päivämäärä: 14.05.2025

Valon ja materian kytkentä tarkoittaa komponenttien välistä vuorovaikutusta keskenään, eli sitä kuinka energia siirtyy näiden välillä. Materia-komponenttina tässä tutkielmassa toimii eksitoni, eli elektroniaukkopari. Eksitonia voidaan ajatella myös kaksitasosysteeminä. Valo-komponenttina toimii fotonit, eli elektromagneettisen aallon energiapaketit. Kytkennän tieteenala on kehittynyt viime vuosikymmenien aikana huomattavasti mahdollistaen erittäin suuria kytkentävahvuuksia sekä mahdollisia sovelluksia.

Valon ja kaksitasosysteemin välillä voi tapahtua kolme mahdollista vuorovaikutusta, absorptio, emissio, sekä stimuloitu emissio. Absorptiossa kaksitasosysteemi ”imee” fotonin, emissiossa kaksitasosysteemi emittoi fotonin, sekä stimuloitussa emissiossa kaksitasosysteemi emittoi fotonin toisen fotonin stimuloimana.

Vahvemman fotonin ja kaksitasosysteemin välisen kytkennän mahdollistamiseksi käytetään optista kaviteettia. Kaviteetissa valo kimpoaa peilien välillä, vuorovaikuttaen peilien välisen puolijohteen kanssa. Valon tulokulman kasvaessa kaviteettiin nähden resonoivat aallonpituudet lyhenevät, tätä sanotaan resonanssin sinisiirtymäksi. Kaviteetti voi toimia ohutkalvofilterinä, joka päästää vain tietyt aallonpituudet läpi. Tulokulman kasvaessa filteri päästää lyhyempiä aallonpituuksia kuin mitä suunniteltu, tämä ei ole siis haluttu ominaisuus.

Kytkevävyyden kasvaessa suuremmaksi kuin systeemin häviönopeudet, on systeemi vahvalla kytkentäalueella. Vahvalla kytkentäalueella syntyy kaviteettimoodin ja eksitonin välinen hybriditila, eli eksitoni-polaritoni. Eksitoni-polaritonilla on kaksi uutta energiatilaa, ylempi ja alempi polaritoni. Eksitoni-polaritonien syntyminen huoneenlämmössä on mahdollista orgaanisten puolijohdeiden avulla. Lisäksi orgaaniset puolijohdeet soveltuvat kytkentään hyvin, koska ne absorboivat hyvin fotoneita.

Kytkevävyyden ollessa verrannollinen systeemin ominaistuuksiin, on systeemi ultravahvalla kytkentäalueella. Ultravahvalla kytkentäalueella on vaikutusta valon dispersioon. Säädetäessä parametrejä, ultravahvasti kytkeytyneet kaviteetit voivat olla miltei täysin tulokulmasta riippumaton.

Koska kaviteetti toimii ohutkalvona, voidaan ultravahvasti kytkeytyneitä orgaanisia eksitoni-polaritoneja käyttää interferenssikalvojen suunnitteluun. Näiden ultravahvasti kytkeytyneet ohutkalvot mahdollistavat tulokulmasta riippumattonta läpäisyä. Lisäksi ne voidaan suunnitella päästämään läpi vain erittäin pienen osan näkyvän valon spektristä. Tällaisia ohutkalvoja voitaisiin käyttää esimerkiksi tarkkoihin sensoreihin, tai tietokoneen näyttöihin. Lisäksi orgaaniset aineet ovat usein joustavia, joten näillä ohutkalvoilla voitaisiin päällystää myös kaarevia pintoja. Ultravahvaan kytkentään liittyvät sovellukset ovat vielä suunnitteluvaiheessa. Ala kehittyy kuitenkin nopeaa vauhtia.

Avainsanat: Ultravahva kytkentä, orgaaninen, eksitoni-polaritoni, huoneenlämpö, dispersion hallitseminen

Sisällysluettelo

1	Johdanto	4
2	Valon ja materian kytkentä	5
2.1	Kytkenän komponentit	5
2.1.1	Eksitoni	5
2.1.2	Fotoni	6
2.2	Kytkentä ja sen vahvistus	7
2.3	Kvanttimekaaninen kuvaus	9
2.4	Vahvan kytkennän alue	11
2.5	Ultravahvan kytkennän alue	12
3	Kytkenän analysointi ja optimointi	15
3.1	Analysointimenetelmät	15
3.2	Yleisiä kaviteettikonfiguraatioita	16
3.3	Polaritonin viritysero	16
4	Polaritonien hyödyt ja mahdollisuudet ohutkalvoissa	17
4.1	Ultravahva kytkentä huoneenlämmössä, orgaanisten aineiden käyttö	17
4.2	Orgaaniset eksitoni-polaritonit teknologian kehityksessä	18
4.2.1	Kulmadispersiorajan ylittäminen ja interferenssikalvot	19
4.2.2	Käyttö aurinkokennojen kehityksessä	21
5	Johtopäätökset	22
	Lähteet	24

1 Johdanto

Bohr, Einstein, sekä Schrödinger loivat teoreettisen pohjan kvanttimekaniikalle kuvatessaan yksittäisten kvanttipartikkelien havaitsemista ja manipuloimista tuhoamatta niitä [1]. Ajatuskokeiden tarkoituksena oli ymmärtää kvanttipartikkelien epäintuitiivista käyttäytymistä verrattuna ympärillämme pyörivään makroskooppiseen maailmaan. Heidän aikanaan kvanttipartikkelien havaitseminen oli mahdollista ainoastaan kokeellisten menetelmien, kuten hiukkaskiihdyttimien avulla, jolloin ainoastaan hiukkasten jättämät jäljet oli mahdollista havaita. Näiden kvanttipartikkeleiden havaitseminen reaaliajassa oli vielä mahdoton tehtävä. Vasta kvanttiteorian kehityksen myötä uudenlaiset teknologiat ovat mahdollistaneet yksittäisten partikkeleiden ja niiden kvanttiominaisuuksien havaitsemisen sekä manipuloimisen.

Tämän kehityksen myötä kvanttioptiikan ilmiöitä, eli valoa ja sen vuorovaikutusta materiaalin kanssa, pystytään ymmärtämään yksityiskohtaisemmin. Kvanttioptiikan kehitys on mahdollistanut uudenlaisten valon ja materian välisten hybriditilojen tutkimisen ja manipulaation. Hybriditiloja on erilaisia ja ne voidaan jakaa alaluokkiin, kuten plasmoni-polaritoneihin, fononi-polaritoneihin, sekä eksitoni-polaritoneihin [2]. Tässä tutkielmassa keskitytään eksitoni-polaritoneihin, eli valon ja eksitonin väliseen hybriditilaan.

Materian osuus kytkennässä vaikuttaa suuresti lopullisiin polaritonin ominaisuuksiin. Kytkennässä käytetyn puolijohdemateriaalin rakenne, sen ominaisuudet, sekä sen järjestäytyminen määrittävät eksitonin ominaisuudet, kuten energiatasot ja eliniän. Sovelluksen mukaan tarvittavat ominaisuudet voivat erota suuresti. Tämän takia materiaalivalintojen ymmärtäminen ja yleisemmin materiaalitekniikan ymmärtäminen on tärkeä osa eksitoni-polaritonien ymmärtämistä.

Tässä tutkielmassa käydään ensin läpi valon ja materian välistä vuorovaikutusta, kytkeytymistä. Kytkeytymisen ymmärryksen pohjalta käydään läpi kytkeytymisen vahvistamisen periaatteet ultravahvalle kytkentäalueelle asti. Teoreettisen osuuden jälkeen käydään läpi mahdollisia analyysimenetelmiä, ja sovelluksia. Lopuksi aplikaatiot. Tutkielman teoriaosiossa keskitytään orgaanisten eksitoni-polaritonien ymmärtämiseen ja sovellusosiossa dispersiorajan ylitämiseen ohutkalvoissa.

2 Valon ja materian kytkentä

2.1 Kytkennän komponentit

Valon ja materian välistä kytkentää voidaan ymmärtää siihen osallistuvien komponenttien, eksitonin ja fotonin, välisen vuorovaikutuksen kautta [3]. Tätä vuorovaikutusta mallinnetaan kaksitasosysteemin ja kaviteettimoodin avulla. Energiasiirtymän avulla voidaan ymmärtää, kuinka komponenttien välistä vuorovaikutusta voidaan vahvistaa. Lopulta vahvan kytkennän seurauksena syntyy hybriditila. Tässä kappaleessa käsitellään eksitonin ja fotonin ominaisuuksia. Sen jälkeen syvennytään kytkennän syntymiseen, vahvan kytkennän alueeseen, ultravahvan kytkennän alueeseen, sekä niiden välisiin eroihin [4]. Lopuksi käydään läpi mahdollisia tulevaisuuden sovelluksen kohteita.

2.1.1 Eksitoni

Kvanttiteorian myötä ymmärrys maailmasta on muokkautunut suuresti. Ymmärrys materiaalista osoittautui vääräksi, kun materiaalilla havaittiin hiukkasluonteen lisäksi myös aaltoluonnetta. Tätä kutsutaan nykyään aalto-hiukkasdualismiksi. Materia, kuten atomit (atomin ydin sekä elektronit) voivat siis käyttäytyä myös aallon tavoin, riippuen olosuhteista. Aikaisemman ymmärryksen mukaan valo ja materia olivat täysin erilaisia toisiinsa nähden, mutta nykyään voidaan kuvitella materian ja valon olevan jatkumolla, joiden ääripäät ovat aaltoluonne ja partikkeliluonne. Materian paikka perinteisesti tällä jatkumolla on partikkeliluonteen puolella, kun taas valo on aaltoluonteen puolella. Paikka jatkumolla ei ole ehdoton, vaan luonne voi muuttua ympäristön vaikutuksesta.

Materiaali koostuu atomeista ja niistä syntyvistä rakenteista, kuten molekyyleistä. Nämä materiaalit voivat olla johtavia, puolijohtavia, tai eristeitä [5]. Johtavat materiaalit johtavat sähköä hyvin, koska niiden valenssivyön, elektronien perustilan, sekä johtavuusvyön välissä ei ole energia-aukkoa. Tällaisia materiaaleja ovat esimerkiksi kuparihila, jossa elektronit ovat vapaita. Eristeissä tämä aukko taas on erittäin suuri, jonka takia elektronit eivät pääse johtavuusvyölle ja täten johtamaan sähköä. Puolijohteen elektronit sen sijaan tarvitsevat ulkoista energiaa kuten valohiukkasen virittyäkseen valenssivyöltä johtavalle vyölle. Elektronin noustessa puolijohteessa johtavalle vyölle syntyy elektroni-aukko. Jos näiden

väläinen vetovoima toisiinsa on tarpeeksi suuri, pysyy elektroni aukon lähellä. Kokonaisuutta sanotaan eksitoniksi. Eksitonia voidaan ajatella kaksitasosysteeminä, eli sillä on kaksi erillistä energiatasoa, eksitoni on olemassa (kun elektroni johtovyöllä) tai eksitoni ei ole olemassa (kun elektroni valenssivyöllä).

2.1.2 Fotoni

Valo koostuu elektromagneettisesta (EM) säteilystä, jolla on materian tavoin sekä aalto- että partikkeliluonnetta. Kvanttimekaanisesta näkökulmasta säteilyn sijaan valoa ajatellaan fotoneina, eli elektromagneettisten aaltojen energiapaketteina. Näillä fotoneilla on tietty energiamäärä riippuen aallonpituudesta. Fotoni on bosoninen partikkeli. Näkyvän valon aallonpituudet ovat välillä $0.4\text{--}0.7\ \mu\text{m}$, joista sinisen valon aallonpituudet ovat lyhyitä. Lyhyemmillä aallonpituuksilla on suurempi energia, kun taas punaisen valon aallonpituudet ovat pidempiä, jolloin niillä on pienempi energia. Kaikki näkyvän valon aallonpituudet ovat sinisen ja punaisen valon aallonpituuksien välissä. Yksittäisen fotonin energia voidaan määrittää kaavalla

$$E = h\nu = \hbar\omega, \quad (1)$$

jossa h on Planckin vakio, ν on taajuus, ω on fotonin kulmataajuus ja \hbar on redusoitu Planckin vakio [3].

Valonnopeuden on laskettu olevan ilmassa ja vakuuissa $299\ 792\ 458\ \text{m/s}$. Kun elektromagneettinen aalto siirtyy faasista toiseen, jonka koostumus on huomattavasti eri, muuttuu sen nopeus. Jos aalto tulee materiaaliin kulmassa, niin valo taittuu. Kuinka paljon valo taittuu, eli muuttaa suuntaansa tulokulmaan nähden riippuu materiaalin taitekertoimesta. Taitekerroin riippuu aallonpituudesta, joka vaikuttaa valonnopeuteen uudessa faasissa. Taitekulma voidaan laskea taitekertoimista Snellin lailla,

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2, \quad (2)$$

jossa n_1 on lähtöfaasin taitekerroin, θ_1 on tulokulma, n_2 on tulofaasin taitekerroin, θ_2 on taittumiskulma.

Taitekerroin on siis aallonpituuskohtaista. Lyhyemmät aallonpituudet hidastuvat enemmän, eli niiden taitekerroin on suurempi, eli muuttaa suuntaa enemmän tulokulmaan nähden.

Esimerkiksi sinisen valon taitekerroin on suurempi kuin punaisen, mikä johtaa eroaviin taittumiskulmiin eli valon dispersioon. Valo ”etsii” aina nopeimman reitin materiaalin läpi kohdasta a kohtaan b. Reitti ei aina ole lyhyin, mutta nopein. Tätä sanotaan Fermat’n periaatteeksi. Valon taittuminen nähdään usein rajoittavana tekijänä suunniteltaessa esimerkiksi ohutkalvoja [6].

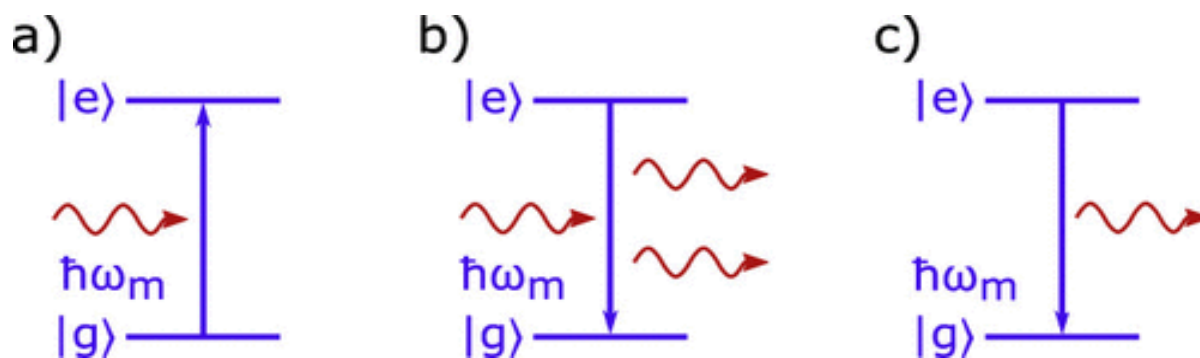
2.2 Kytkeä ja sen vahvistus

Valo ja materia vuorovaikuttavat jatkuvasti esimerkiksi kimmoten materiaalien pinnasta, tai imeytyen osittain materiaaliin. Tällainen vuorovaikutus on lyhytkestoista ja peruuttamatonta. Valon imeytyessä materiaaliin sen energia voi muuttua lämpöenergiaksi. Valon ja materiaalin välillä voi kuitenkin siirtyä energiaa myös edestakaisin. Tällaista vuorovaikutusta sanotaan valon ja materiaalin kytkentämiseksi.

Fotonin ja kaksitasosysteemin välillä voi tapahtua kolme erilaista vuorovaikutusta: absorptio, emissio, sekä stimuloitu emissio [3]. Kuvassa 1 havainnollistetaan mahdolliset vuorovaikutukset.

Absorptiossa kaksitasosysteemi ”imee” fotonin energian nousten valenssitasolta johtavuusvyölle. Absorptio on mahdollista vain, jos Bohrin taajuusehto täyttyy, eli jos fotonin energia vastaa systeemin muutosenergiaa. Energia imeytyy elektroniin, mutta myös atomi reagoi, tai molekyyllissä kaikki sen atomit reagoivat elektromagneettiseen kenttään.

Emissiossa korkeamman energiatason omaava kaksitasosysteemi palaa alemmalle energiatasolle, valenssitasolle, jolloin energia emitoituu fotonina. Emissio voi tapahtua spontaanisti, tai vaihtoehtoisesti fotonin stimuloimana, jolloin puhutaan stimuloidusta emissiosta.



Kuva 1. Mahdolliset valon (fotonin) ja kaksitasosysteemin välillä tapahtuvat vuorovaikutukset. a) absorptio, b) stimuloitu emissio, c) emissio. $|g\rangle$ tarkoittaa alhaisinta kaksitasosysteemin energiatilaa, eli elektronin valenssivyötä. $|e\rangle$ tarkoittaa virittyynyttä elektronin energiatilaa, tällöin on siis muodostunut elektroni ja elektroniaukko, eli eksitoni. Kuva muokattu lähteestä [3], käytetään Commons CC-BY 4.0 lisenssillä.

Fotonin ja kaksitasosysteemin vahvemman kytkeytymisen mahdollistamiseksi käytetään optista kaviteettia. Yksinkertaisimmillaan kaviteetti koostuu kahdesta todella lähellä toisiaan olevasta peilistä, joiden välin geometrinen etäisyys on L_c , ja yleisesti niiden välissä on jotakin kiinteää ainetta (myös nestemäinen mahdollista). Tätä sanotaan Fabry-Pérotin kaviteetiksi [7]. Peilien ansiosta absorboitu fotoni emittoituu uudelleen ja taas absorboituu synnyttäen syklin. Kaviteetin tarkoituksena on siis sulkea ja pitää valo rakenteen sisällä, jolloin se voi vuorovaikuttaa uudestaan ja uudestaan kaksitasosysteemin kanssa.

Riippuen peilien välisestä etäisyydestä, tietyt aallonpituudet vahvenevat konstruktiiivisesti, kun taas toiset destruktiivisesti. Tämän ansiosta vain spesifit aallonpituudet jäävät resonoimaan peilien välille. Toisin sanoen vain seisovat aallonpituudet jäävät resonoimaan kaviteetissa. Näitä resonoivia aallonpituuksia sanotaan kaviteettimoodiksi. Kyseiset kaviteettimoodit voidaan määrittää kaavalla

$$n_{eff}L_c = m \frac{\lambda}{2}, \quad (3)$$

jossa n_{eff} on kaviteetin sisämateriaalin taitekerroin, m on kokonaisluku, sekä λ on aallonpituus [3]. Voimme siis suunnitella tiettyyn sovellukseen sopivia kaviteetteja, joissa tietyt aallonpituudet resonoivat, muuttamalla peilien välistä matkaa.

Peilien välisen matkan lisäksi aallon tulokulmalla on vaikutusta kaviteetissa siihen, mikä aallonpituus resonoii. Verrattuna kohtisuoraan tulevaan resonoivaan aallonpituuteen, kulmassa tulleen aallon resonoiva aallonpituus on lyhyempi. Kun tiedossa on kohtisuoraan tuleva

resonoiva aallonpituus λ_{res} , sekä kaviteetin välisen materiaalin taitekerroin n , voimme laskea resonoivan aallonpituuden missä vain tulokulmassa kaavalla

$$\lambda_{res}(\theta) = \lambda_{res} \sqrt{1 - (\sin \theta / n)^2}, \quad (4)$$

jossa θ on tulokulma [6]. Yleisesti ottaen kulmassa tullut fotoni saa uuden komponentin aaltovektoriinsa, eli resonoiva aallonpituus on lyhyempi verrattuna kohtisuoraan tulevaan fotoniiin. Kaviteettien kontekstissa tätä sanotaan resonanssin sinisiirtymäksi.

Ideaalisesti fotoni pysyisi kaviteetissa loputtomasti, mutta todellisuudessa energia hajoaa ympäristöön. Riippuen kaviteetissa käytetyistä materiaaleista sekä kaviteetin arkkitehtuurista, voimme kuitenkin vaikuttaa kuinka kauan fotoni pysyy kaviteetissa. Tätä optisten syklien määrää merkitään kirjaimella Q , jota sanotaan myös kaviteetin laatutekijäksi [7]. Erittäin korkean laatutekijän omaavissa kaviteeteissa fotoni pysyy vain erittäin lyhyitä aikoja. Korkeilla Q kertoimilla ($Q = 10^3 - 10^4$) fotonin elinikä kaviteetissa on enintään muutamia pikosekunteja [7].

Puhuttaessa heikon kytkennän alueesta kaviteetin systeemin häviönopeudet, fotonin häviönopeus (γ_c) ja eksitonin häviönopeus (γ_m), ovat suurempia kuin fotonin ja eksitonin kytekytymisen vahvuus g , eli

$$\gamma_m + \gamma_c > g. \quad (5)$$

2.3 Kvanttimekaaninen kuvaus

Tähän mennessä olemme puhuneet pelkästään yksittäisen eksitonin ja fotonin vuorovaikutuksesta. Näiden välistä vuorovaikutusta voidaan paremmin ymmärtää kvanttimekaanisella kuvauksella, jonka avulla voimme laskennallisesti määrittää mahdolliset energiatilat.

Kvanttimekaniikassa Hamiltonin operaattoreilla kuvataan systeemin kokonaisenergiaa ja vapaata aikakehitystä. Voimme siis selittää yksittäisen kaksitasosysteemin, sekä yksittäisen sähkömagneettisen aallon välistä vuorovaikutusta [4]. Tällaisen vuorovaikuksen ymmärtämiseksi Isidor Rabi esitti Rabi-mallin vuonna 1936, joka nykyisin tunnetaan nimellä kvantti Rabi -malli. Mallia kuvataan Hamiltonin operaattorilla

$$\hat{H}_R = \hbar(\Omega/2)\hat{\sigma}_z + \hbar\omega\hat{a}^\dagger\hat{a} + g(\hat{\sigma}_+ + \hat{\sigma}_-)(\hat{a} + \hat{a}^\dagger), \quad (6)$$

jossa Ω on kaksitasosysteemin siirtymäenergian taajuus, ω on elektromagneettisen kentän taajuus, $\hat{\sigma}_z$ on Pauli-matriisi, $\hat{\sigma}_+$ ja $\hat{\sigma}_-$ ovat kaksitasosysteemin viritys- ja purkautumisoperaattorit, \hat{a} ja \hat{a}^\dagger ovat bosonisen kenttämoodin tuhoamis- ja luomisoperaattorit [4]. Pauli-matriisit selittävät materiaosuudessa tapahtuvat muutokset. Bosonikenttämoodin tuhoamis- ja luomisoperaattorit selittävät valo-osuudessa tapahtuvat muutokset.

Kvantti Rabi -malli on monimutkainen, ja täten usein tutkittaessa heikkoa tai vahvaa kytkentää käytetään yksinkertaistettumpia Hamiltonin operaattoreita.

Kvantti Rabi -mallia approksimoimalla saadaan yksinkertaistempi Jaynes-Cummings -malli, eli JC-malli. JC-mallia käytetään selittämään kaviteetissa tapahtuvan yksittäisen kaksitasosysteemin ja fotonin välistä vuorovaikutusta, kun kytkentä on heikkoa tai vahvaa. Voimme määrittellä systeemin energiatilat diagonalisoimalla JC-Hamiltonin

$$\hat{H}_{JC} = \hbar\omega_m\hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- + \hbar\omega_c\hat{a}^\dagger\hat{a} + g(\hat{a}\hat{\sigma}_+ + \hat{a}^\dagger\hat{\sigma}_-), \quad (7)$$

jossa $\hbar\omega_m$ on kaksitasosysteemin korkeamman ja matalemmän energiatasojen energiaero [8]. $\hbar\omega_c$ on kenttätilan energia. \hat{a}^\dagger on fotonin luomisoperaattori ja \hat{a} fotonin tuhoutumisoperaattori, g on kytkentävahvuuden suuruus kaksitasosysteemin ja fotonin välillä.

Käytännön kokeista miltei kaikki kokeet tehdään yhden kaksitasosysteemin sijaan N määrällä molekyyliä. $N:n$ kasvattaminen helpottaa huomattavasti kytkeytymistä, koska kokonaiskytkentävoimakkuus skaalautuu \sqrt{N} :ssä ($g_N = \sqrt{N}g$) [9]. Laskettaessa systeemin energiatilat, jossa on N molekyyliä, sekä jossa kaksitasosysteemit ovat identtisiä, voidaan käyttää Tavis-Cummings Hamiltonin operaattoria (kytkentävahvuuden ollessa heikolla tai vahvalla alueella)

$$\hat{H}_{TC} = \hbar\omega_m \sum_{n=1}^N \hat{\sigma}_+^{(n)} \hat{\sigma}_-^{(n)} + \hbar\omega_c \hat{a}^\dagger \hat{a} + g \sum_{n=1}^N (\hat{\sigma}_+^{(n)} \hat{a} + \hat{\sigma}_-^{(n)} \hat{a}^\dagger), \quad (8)$$

jossa N on molekyylien määrä, sekä g_N on kaikkien molekyylien kytkentävahvuus yksittäiseen kaviteettimoodiin [3].

Operaattorien (7) ja (8) avulla on mahdollista ymmärtää vain heikkoa ja vahvaa kytkentää ”rotating wave” -approksimaation (RWA) takia. RWA:ssa Kvantti Rabi -mallin ristitermit $\hat{a}^\dagger\hat{\sigma}_+$ ja $\hat{a}\hat{\sigma}_-$ jätetään pois. Näillä termeillä on pitkällä aikavälillä hyvin vähän vaikutusta systeemin käyttäytymiseen, tai ne kumoavat toisensa miltei kokonaan. Näitä termejä sanotaan

vastakkaiseen suuntaan pyöriviksi termeiksi. Esimerkiksi JC-mallin aikakehitys ilman näitä termejä on täysin jaksollinen, mutta otettaessa vastakkaiseen suuntaan pyörivät termit mukaan siitä tulee kaottinen [10].

2.4 Vahvan kytkennän alue

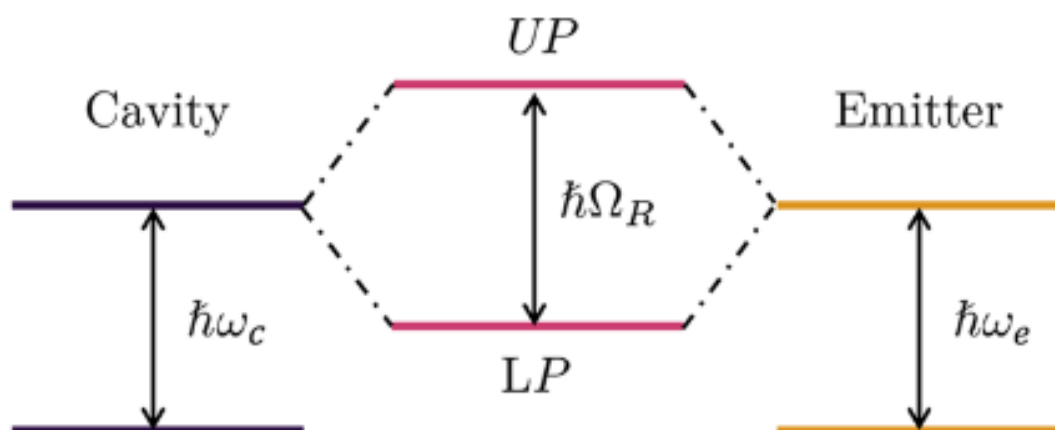
Päästäksemme vahvalle kytkentäalueelle on kytkeytymisvahvuuden oltava yhtä suuri tai suurempi kuin kytkeytymättömien osapuolien häviönopeudet [11]. Tällöin kytkeytymisen vahvuus g_N on yhtä suuri tai suurempi kuin häviönopeudet γ_c ja γ_m , eli

$$g_N \geq \gamma_m + \gamma_c. \quad (9)$$

Kun vaatimukset on täytetty, siirtyy fotonin ja eksitonin välinen systeemi vahvalle kytkentäalueelle. Tällä alueella energia siirtyy kahden energiatilan välillä. Energia siirtyy eksitonin virittymisen ja fotonin emitoitumisen välillä koherentisti tietyllä taajuudella (kyseistä taajuutta sanotaan Rabi-taajuudeksi, merkitään Ω_R), kunnes energiatilat hybridisoituvat uudentilaisiksi ominaistiloiksi. Näitä uusia energiatiloja sanotaan ylemmäksi polaritoniksi (UP, korkeampi energiataso) sekä alemmaksi polaritoniksi (LP, matalampi energiataso) [9]. Tällöin $N - 1$ energiatiloista eivät ole optisesti aktiivisia, ja niitä sanotaan eksitonivarstoksi. Eksitonivarastolla on suuri vaikutus systeemin ominaisuuksiin.

Yleisesti valon ja materiaalin välisen hybridisoitumisen seurauksena syntyneitä uusia tiloja sanotaan polaritoniksi [2]. Tässä tutkielmassa polaritonia käytetään selittämään valon ja materiaalin hybridisaatiota, jossa materiaalikomponenttina toimii orgaanisessa molekyyllisessä tapahtuva elektronisiirtymä, eli eksitoni.

Eksitonin ja kaviteettimoodin ollessa resonanssissa, ylemmän ja alemman polaritonin syntyessä, sillä ei enää ole eksitoni- tai kaviteettimooditiloja. Heikossa kytkennässä eksitonin ja kaviteettimoodin energiatilan arvot voivat olla samat, mutta tästä poiketen vahvassa kytkennässä uusien energiatilojen arvot eivät voi olla. Näitä sanotaan ei-risteäviksi energiatiloiksi (avoided crossing; tai anticrossing) [12]. Ei-risteävien energiatilojen takia polaritonien välillä on energiaero. Tätä energiaeroa sanotaan Rabi-jakautumiseksi ($\hbar\Omega_R$). Koska polaritoni on puoliksi fotoni ja puoliksi eksitoni, on sillä kummankin osapuolen ominaisuuksia, kuten alhainen efektiivinen massa [13]. Hybriditilan jakautuminen on esitetty kuvassa 2.



Kuva 2. Eksitonin transition (keltainen) ja kaviteettimoodin (musta) kytkeytymisen seurauksena syntyneet hybriditilat, ylempi ja alempi polaritoni (punainen), erotettuna Rabi-jakautumisenergialla. Kuva otettu lähteestä [9], Commons CC-BY 4.0 lisenssin alaisena.

Rabi-jakautumisen suuruus riippuu kytkentävahvuudesta, joka puolestaan riippuu käytettyjen molekyylien siirtymädipolimomentista $\vec{\mu}$, molekyylien määrästä N , sekä käänteisestä mooditilavuudesta V . Siis molekyylien tiheydellä on vaikutusta kytkentävahvuuteen. Jakautumista voidaan laskea yhtälöllä

$$\hbar\Omega_R = 2\hbar g_N = 2|\vec{\mu}|\sqrt{N}\sqrt{\frac{\hbar\omega_c}{2\epsilon_0 V}}, \quad (10)$$

jossa ϵ_0 on permittiivisyys [3].

2.5 Ultravahvan kytkennän alue

Kytchentävahvuuden saavuttaessa arvon $\frac{g}{\omega} > 0.1$ siirtyy systeemi ultravahvalle alueelle. Tällöin kytkentävahvuus on verrannollinen ominaistaajuuksiin [4]. Ultravahvalla kytkentäalueella RWA ei enää päde, joten vastakkaiseen suuntaan pyörivät termit täytyy ottaa huomioon Hamiltonissa. Se, kuinka termit otetaan huomioon, riippuu ultravahvan alueen kytkennän vahvuudesta. Vahvalla, sekä ultravahvalla kytkennällä on erilaisia vaikutuksia hybriditilaan. Ultravahvan kytkennän vaikutukset ovat epäintuitiivisempia verrattuna muihin.

Ultravahva alue jaetaan häiriöteoreettiseen alueeseen ("perturbative region") sekä ei-häiriöteoreettiseen alueeseen ("non-perturbative region").

Häiriöteoreettisella ultravahvalla alueella kytkentävahvuuden suuruus systeemin resonanssitaajuuteen nähden on välillä: $0.1 < \frac{g}{\omega} < 0.3$. Tällöin RWA ei siis enää päde [4], vaan vastakkaiseen suuntaan pyörivät termit voidaan tulkita resonanssista pois vievänä kenttänä. Ne aiheuttavat siis energiatasojen siirtymää, jota voidaan käsitellä häiriöteoreettisesti. Näkyvin muutos energiatasoissa tapahtuu kaksitasosysteemissä. Siirtymää kutsutaan Bloch-Siegert siirtymäksi. Tämä siirtymä lisätään JC-Hamiltoniin, jolloin saamme Bloch-Siegert Hamiltonin:

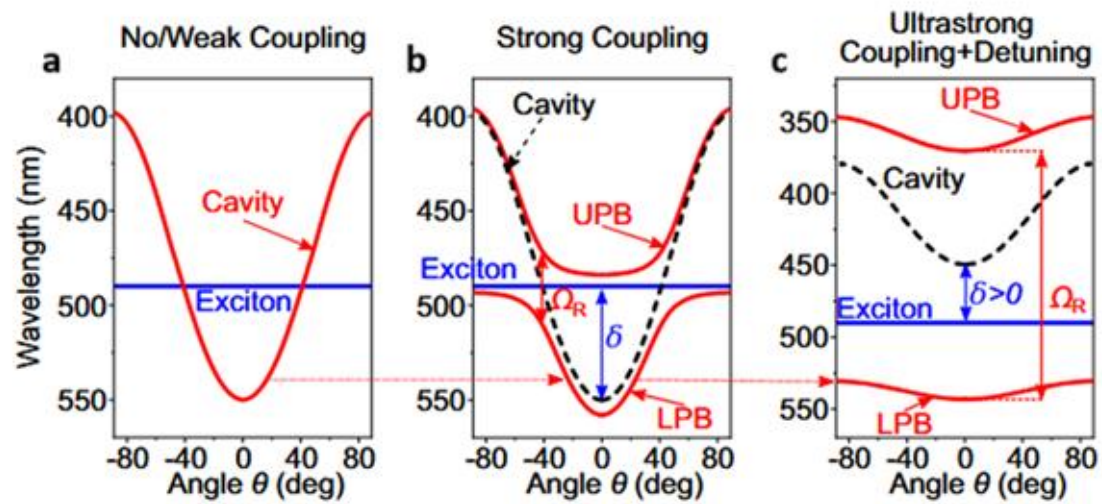
$$\hat{H}_{BS} = \hat{H}_{JC} + \Delta_{BS}\hat{\sigma}_z = \frac{1}{2}\hbar\omega_m\hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- + \hbar(\omega_c + \Delta_{BS})\hat{a}^\dagger\hat{a} + \hbar g(\hat{a}\hat{\sigma}_+ + \hat{a}^\dagger\hat{\sigma}_-) \quad (11)$$

jossa Δ_{BS} on Bloch-Siegertin siirtymä - $\Delta_{BS} \equiv g^2/(\omega_c + \omega_m)$.

Ei-häiriöteoreettisella alueella, jossa $0.3 < \frac{g}{\omega} < 1$, on käytettävä täyttä Hamiltonin operaattoria, eli operaattoria (6). Täyden Hamiltonin operaattorin käyttöä vältetään koska se on huomattavasti monimutkaisempi ja vaativampi laskea.

Vahvasta kytkentäalueesta poiketen ultravahvan alueen perustila eroaa huomattavasti, etenkin ei-häiriöteoreettisella alueella. Perustila ultravahvalla kytkentäalueella on puristettu vakuumi ("squeezed vacuum"), jossa esiintyy tietty määrä fotoneita ja eksitoneja [14]. Vakuumin puristusaste kasvaa kytkennän vahvuuden kasvaessa. Tässä puristuneessa perustilassa komponentit ovat lomittuneet.

Käytettäessä täyttä Hamiltonia, otettaessa kaikki termit huomioon, ei-risteävät energiatilat ovat asymmetrisiä [4]. Eli vahvalla kytkentäalueella Rabi-jakautumisen kasvaessa ylempi polaritoni kasvaa yhtä nopeasti kuin alempi polaritoni pienenee. Tästä poiketen Ultravahvalla kytkentäalueella ylempi polaritoni kasvaa nopeammin kuin alempi polaritoni pienenee johtaen asymmetrisiin energiatiloihin.



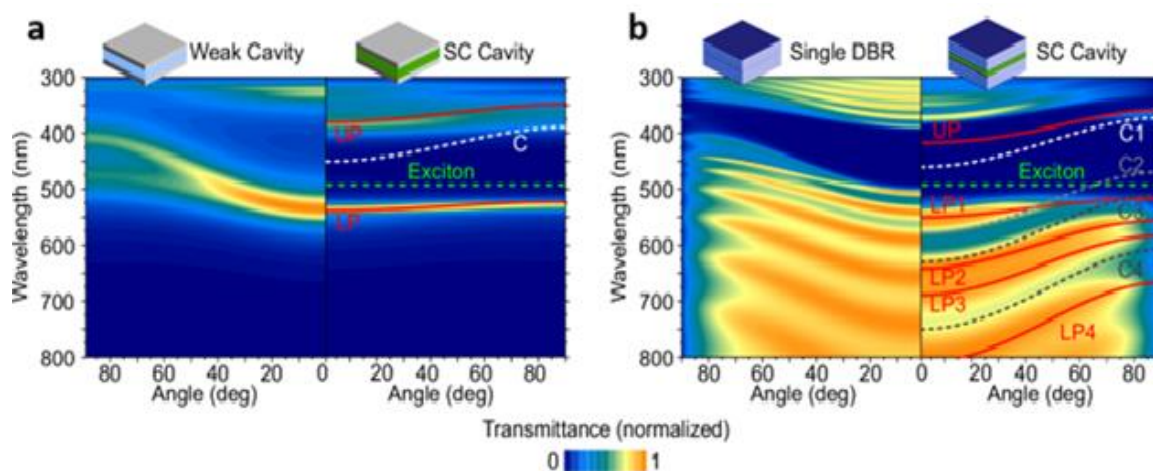
Kuva 3. **a** Heikko kytkentä, jossa energiatilat voivat olla risteävät. **b** Vahva kytkentä, jossa energiatilat ovat ei-risteävät, kytkentä vaikuttaa myös kulmadispersioon. **c** Ultravahva kytkentä, energiatilat ei-risteävät, kulmadispersio hyvin vähäistä. Käytetään Commons CC-BY 4.0 lisenssin alaisena. Kuva on otettu ja muokattu lähteestä [6].

3 Kytkenän analysointi ja optimointi

3.1 Analysointimenetelmät

Vahvan kytkennän ansiosta syntyneet polaritonit on mahdollista havaita spektroskopialla [8]. Yleisesti havaitsemiseen voidaan käyttää reflektio-, transmissio-, tai fotoluminesenssispektroskopiaa. Reflektiospektroskopiassa mitataan reflektoituneiden aallonpituuksien osuudet, kun taas transmissiospektroskopiassa mitataan (tässä tapauksessa) kaviteetin läpi kulkevan valon transmissio-osuudet. Fotoluminesenssispektroskopian avulla mitataan polaritonien emittoiman fotonin energiaa ja sen aaltovektoria.

Tilanteessa jossa tarkoituksena on nähdä valon tulokulman vaikutusta reflektioon ja transmissioon, on mahdollista yksinkertaisesti muuttaa valon tulokulmaa kaviteettiin nähden. Polaritonien jakautuminen on mahdollista havaita transmissiopiikeistä. Kuva 4 osoittaa läpäisevien aallonpituuksien piikkien jakautumisen kahteen. Ylempi polaritoni (UPB) on huomattavasti hankalampi nähdä, koska se emittoi vähemmän valoa kuin alempi polaritoni (LPB). Tämä johtuu ylemmän polaritonin nopeammasta hajoamisnopeudesta, eli se hajoaa useammin emittoimatta, sekä sen suuremman eksitoniluonteen takia [3].



Kuva 4. **a** Vasemmalla puolella heikon kytkennän vaikutus dispersioon, oikealla puolella vahvan kytkennän vaikutus. **b** Bragg-reflektorin (DBR) simuloitu kytkennän vaikutus dispersioon, vasemman puolen kaviteetti heikolla kytkentäalueella, oikea puoli vahvalla kytkentäalueella. Käytetään Commons CC-BY 4.0 lisenssin alaisena. Otettu ja muokattu lähteestä [6].

Kuvan 3 kohdan **a** heikon ja vahvan kytkennän eroista havaitaan huomattavaa parannusta kulmadispersioiden sietokykyyn. Heikossa kytkennässä kulman kasvaessa tapahtuu suurta sinisiirtymää.

3.2 Yleisiä kaviteettikonfiguraatioita

Yksinkertaisten Fabry-Pérot -kaviteettien lisäksi (joissa yksittäiset peilit) tutkimuksissa saatetaan käyttää jaksollisia Bragg-heijastimia (DBR), jotka omaavat yksittäisten peilien sijaan monia kerroksia [13]. DBR-kerrokset koostuvat kahdesta (tai useammasta) vuorottain vaihtelevista eri taitekertoimen omaavista materiaaleista. Toinen näistä materiaaleista omaa korkean taitekertoimen ja toinen matalan. Riippuen tahdotuista kaviteettimooodeista voimme käyttää tiettyjä materiaaleja sekä tietyn paksuisia kerroksia mahdollisimman hyvän heijastumisen mahdollistamiseksi. Yleisesti yksittäisen kerroksen paksuus on kaviteettimoodin aallonpituuden neljänneksen paksuinen, eli $\frac{\lambda}{4}$ [15].

3.3 Polaritonin viritysero

Polaritonien virityserolla tarkoitetaan kohtisuoraan tulevan fotonin resonanssin ja pelkän eksitonin resonanssitaajuuden välistä eroa. Virityseron muuttaminen toimii yhtenä parametrina suunniteltaessa polaritoni-sovelluksia, koska viritysero mahdollistaa polaritonin dispersion muokkaamisen [6].

Kaviteettimoodin aallonpituuden ollessa lyhyempi kuin eksitonin resonanssitaajuus on viritys positiivista kuten kuvassa 3c, $\delta > 0$. Vastaavasti viritys on negatiivista kaviteettimoodin ollessa aallonpituudeltaan pidempää kuten kuvassa 3b.

Virityseron suuruutta voidaan muokata säätämällä kaviteetin peilien välistä matkaa L , koska tällöin kaviteettimoodin taajuus muuttuu. Vaihtoehtoisesti virityseroon on mahdollista vaikuttaa lämpötilan avulla [16]. Lämpötilan muutos vaikuttaa eksitonin valenssivyön ja johtavuusvyön väliseen eroon.

4 Polaritonien hyödyt ja mahdollisuudet ohutkalvoissa

4.1 Ultravahva kytkentä huoneenlämmössä, orgaanisten aineiden käyttö

Alkujaan eksitoni-polaritonien historia alkoi systeemeistä, joissa käytettiin epäorgaanisia puolijohdeita. Tähän käytettiin metalliyhdisteitä kuten GaAs ja CdTe. Epäorgaanisten puolijohdeiden eksitonien, ja täten eksitoni-polaritonien, heikkoutena on niiden elektronin ja elektroniaukon välinen heikko sitoutumisenergia. Tämä energia on niin pieni, ettei se ole pysyvä huoneenlämmössä aiheutuvan termisen vaihtelun (26 meV) takia [13]. Täten epäorgaanisten eksitoni-polaritonien kohdalla joudutaan tukeutumaan kryogeenisiin lämpötiloihin, eli alle $-150\text{ }^{\circ}\text{C}$ lämpötiloihin.

Teoreettisesti puhuttaessa eksitoni-polaritoneista usein pohditaan tapauksia, joissa on vain yksi eksitoni, joka toimii kaksitasosysteeminä. Käytännössä yksittäinen kaksitasosysteemi ja kaviteettimoodi on erittäin haastavaa kytkeä vahvasti, koska kytkeytymisvahvuuden g on oltava yhtä suuri tai suurempi kuin näiden häviönopeudet. Häviönopeuksien vahvuutta on kuitenkin mahdollista pienentää ja vastaavasti kytkeytymisvahvuutta suurentaa. Tämä vaatii pitkäikäisiä eksitoneja sekä kaviteettimodeja, mikä on mahdollista saavuttaa kryogeenisissä lämpötiloissa. Kuten aikaisemmin johdettu, suuremmat kytkentävahvuudet on huomattavasti helpompi saavuttaa, kun molekyylien määrä N on suuri, käytännössä tutkimus keskittyykin suurelta osin suuren N :n kytkentään kaviteettimoodin kanssa [9].

Orgaanisten puolijohdeaineiden korkea tiheys sekä suuret dipolimomentit mahdollistavat paljon suurempaa Rabi-jakautumista, $\Omega_R \geq 100\text{ meV}$, joka puolestaan mahdollistaa vahvaa, sekä ultravahvaa kytkeytymistä huoneenlämmössä (huoneenlämmön lämpövaihtelu $<$ orgaanisten puolijohdeiden eksitonisitoutumisenergia) [3]. Suuri osa käytännön kokeista ultravahvan kytkennän saavuttamiseksi orgaanisissa puolijohdeissa on tehty molekyyileillä, jotka ovat suuntautuneet satunnaisesti, tällöin Rabi-jakautumisen vahvuudeksi on saatu $\Omega_R \approx 1\text{ eV}$.

Molekyylien dipolimomenttien suuntauksella sähkökenttään nähden on myös vaikutusta Rabi-jakautumisen suuruuteen, joten 1eV vahvuuden yli on mahdollista päästä. Kun dipolimomentit on suunnattu sähkökenttään nähden, on Rabi jakautumisen suuruuteen mahdollista saada $\sqrt{3}$ kerroin. Kokeellisesti tällä tavalla on päästy $\Omega_R = 1.8\text{ eV}$ Rabi jakautumiseen F6T2-nimisellä orgaanisella aineella [17]. Koska orgaanisten aineiden kytkentävahvuudet ovat suuria, voidaan vahvalle kytkentäalueelle silti päästä, vaikka käytettäisiin alhaista kaviteetin laatutekijää Q , tai

vaikka kaviteettimoodin häviönopeus olisi suuri [9], [11]. Tarvittavan kaviteettimoodin ollessa näkyvän valon aallonpituuksien rajoissa, orgaaniset väriaineet kuten C545T on hyvä vaihtoehto suurien kytkeytymisvahvuuksien saavuttamiseksi [6].

Muitakin orgaanisia polymeerejä voidaan käyttää kytkeytymiseen, esimerkiksi polysilaani-perheeseen kuuluvaa PBPS [bis(p-butylphenyl) silane] [18]. PBPS:n eksitonin sitomisenergia on myös korkea (500 meV), joten se on stabiili huoneenlämmössä. Puolijohde sijoitettiin rakenteeseen jossa toisena peilinä toimi DBR-rakenne, jossa on 18 kerrosta vuorottain vaihtelevaa korkean ja matalan taitekertoimen omaavaa materiaalia. DBR-rakenteen kokonaispaksuus on 390 nm. DBR-rakenteen päällä 110 nm PBPS kerros sekä lopuksi PBPS:n päällä alumiinista koostuva peili. Tällä kaviteettikonfiguraatiolla mitattiin 430 meV Rabi-jakautuminen, joka on vahvalla kytkentäalueella.

Vahva ja etenkin ultravahva orgaanisten aineiden kytkentä mahdollistaa OLED:ien ("organic light emitting diode") kehittämistä suuntaan, jossa kytkennän ansiosta emittoitunut valo olisi alloonpituuksiltaan huomattavasti spektriltään kapeampaa. Lisäksi kaviteetin ja kytkennän parametrien hienosäädön avulla on mahdollista saada OLED:ista miltei riippumattoman katsomiskulmasta (ei sinisiirtymää) [18].

4.2 Orgaaniset eksitoni-polaritonit teknologian kehityksessä

Vaikka ultravahvasti kytkeytyneiden systeemien ymmärtäminen ja ennustaminen on osoittautunut hankalaksi, teoreettinen tausta on kuitenkin kehittynyt ja sen pohjalta on syntynyt uudenlaisia mahdollisuuksia. Ultravahvasti kytkeytyneet aineet ovat mahdollistaneet esimerkiksi Bose-Einstein kondensaattien tutkimisen, kvantti-inoformaation prosessoinnin sekä polaritonien avulla kemiallisiin reaktionopeuksiin vaikuttamisen (näitä kaikkia ei ole toteutettu orgaanisilla eksitoni-polaritoneilla)[9]. Orgaanisille eksitoni-polaritoneille olennaisia mahdollisuuksia ovat erilaisten ohutkalvojen kehitys, kuten interferenssikalvojen kehitys sekä aurinkopaneelien kehitys, joita tässä tutkielmassa käydään läpi.

4.2.1 Kulmadispersiorajan ylittäminen ja interferenssikalvot

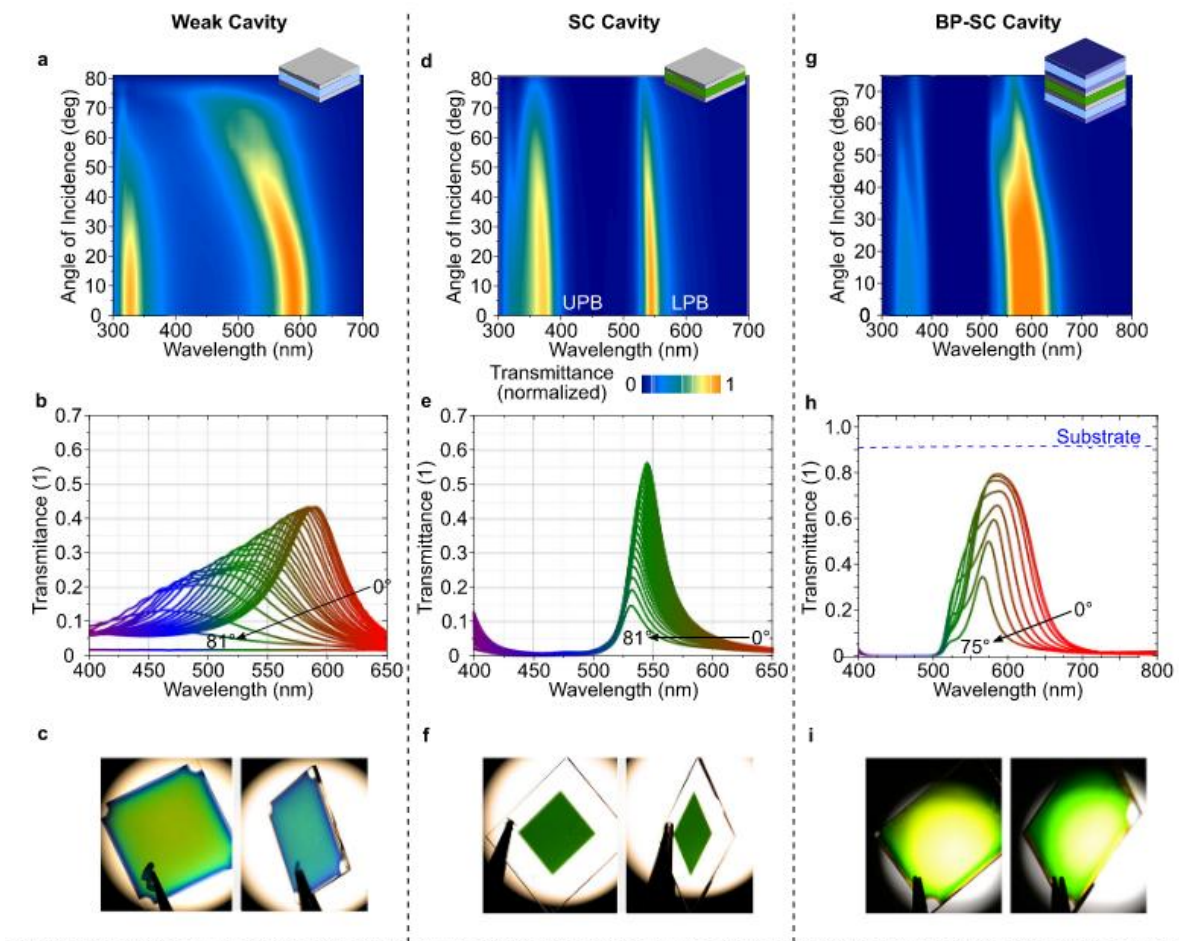
Ohutkalvot ovat erittäin ohuita läpinäkyviä kalvoja. Näitä ohutkalvoja voidaan käyttää tiettyjen aallonpituuksien pois seulomiseen interferenssin avulla. Täten ne ovat saaneet nimekseen interferenssiohutkalvot. Tieteessä interferenssiohutkalvoja käytetään erilaisissa instrumenteissa, kuten optisissa sensoreissa ja spektroskopiassa. Jokapäiväisessä elämässä ne tulevat vastaan esimerkiksi silmälasien heijastuksenestopinnoitteissa sekä tietokoneiden näytöissä. Nämä ohutkalvot ovat kuitenkin herkkiä tulokulman muutokselle. Kun tulokulma muuttuu, niin resonoiva aallonpituus siirtyy lyhyempään aallonpituuteen, kuten todettu kaavassa (4).

Tämän takia esimerkiksi tietokoneiden näytöissä katsomiskulmasta riippuen värit ja kontrasti eroavat (etenkin TN-paneeleissa; ”twisted nematic”). Optisissa sensoreissa taas valon tullessa monesta suunnasta interferenssikalvoon, päästää se laajemman spektrin eri aallonpituuksia läpi. Dispersion aiheuttamien ongelmien ratkaisemiseksi yleisimmin käytetään korkean taitekertoimen materiaaleja [6]. On myös esitetty, että entistä korkeampien taitekertoimien omaavia materiaaleja voitaisiin luoda ja niiden avulla saada tarpeeksi suuri hyöty optisiin laitteistoihin sen sijaan, että kehitettäisiin jotain aivan uudenlaista [19]. Näiden korkean taitekertoimien omaavien materiaalien valmistaminen on kuitenkin haastavaa.

Vaihtoehtoinen ratkaisu on ultravahvasti kytkeytyneen eksitoni-polaritonin käyttö, tarkemmin orgaanisen eksitoni-polaritonin, koska kytkeytyminen on mahdollista huoneenlämmössä. Ohutkalvossa (kaviteetissa), eksitoni-polaritonin kytkeytymisvahvuutta (systemin ollessa ultravahvasti kytkeytynyt) ja virittämistä säätämällä kalvosta tulee miltei riippumaton valon tulokulmasta, kuten eksitoni, sekä silti spektriltään kapea kuten optinen resonanssi [6]. Eli eksitoni-polaritonilla on sekä eksitonin että fotonin ominaisuuksia. Tämän ansiosta tulevan valon kulmasta riippumatta läpi transmittoituvan valon aallonpituus muuttuu vain vähän. Tämä kuitenkin vaatii parametrien tarkkaa säätelyä.

Vuonna 2024 julkaistussa tutkimuksessa, *Breaking the angular dispersion limit in thin film optics by ultra-strong light-matter coupling* [6], tutkittiin ultravahvasti kytkeytyneitä intereferenssikalvoja Fabry-Pérot -kaviteetissa sekä erilaisissa DBR-kaviteeteissa. Valmistettujen kaviteettien avulla mahdollistettiin miltei täysin tulokulmasta riippumattomia interferenssiohutkalvoja, joiden sinisiirtymä oli alle 15 nm kun tulokulma oli 80°. Lisäksi kalvon läpäisevien aallonpituuksien spektri pystyttiin säätämään erittäin kapeaksi kuitenkin läpäisten suuren osuuden halutusta aallonpituudesta. Kuvassa 5 on ohutkalvofilterin

kulmariippuva transmissio sekä heikon että ultravahvan kytkennän tapauksessa. Ultravahvan kytkennän tapauksessa mitattu sekä Fabry-Pérot-kaviteetille että DBR-filteerille.



Kuva 5. Kulmasta riippuva transmissio perinteisessä filteerissä (a), ultravahvasti kytkeytyneessä filteerissä (d), sekä ultravahvasti kytkeytyneessä DBR-filteerissä (g). Transmittoituneiden aallonpituuksien osuudet (b) perinteisessä ohutkalvossa, (e) ultravahvasti kytkeytyneessä ohutkalvossa, sekä (h) ultravahvasti kytkeytyneessä DBR-filteerissä. Kohtisuoraan ja kulmasta otettu kuva värimuutoksen havainnollistamiseksi (c) perinteisessä filteerissä, (f) ultravahvasti kytkeytyneessä filteerissä, sekä (i) ultravahvasti kytkeytyneessä DBR-filteerissä. Otettu lähteestä [6], Commons CC-BY 4.0 lisenssin alaisena.

Kuvassa (5a) tulokulma vaikuttaa filteerin läpäiseviin aallonpituuksiin suuresti. Kuvassa (5d) ultravahva kytkentä tekee filteeristä miltei täysin tulokulmasta riippumattoman. Kuvassa (5g) ultravahvasti kytkeytyneen DBR-filteerin avulla on mahdollista saada laajemman aallonpituuksien spektrin läpäisy. Lisäksi näitä ohutkalvoja pystytään teettämään taipuviin rakenteisiin, silti mahdollistaen kulmasta riippumattoman transmission [6].

4.2.2 Käyttö aurinkokennojen kehityksessä

Tämänhetkisessä maailmassa vihreä siirtymä, sekä täten uusiutuvien energialähteiden kehitys on olennainen tutkimuksen ala. Uusiutuvista energialähteistä suuren huomion alla on aurinkopaneelit, jotka koostuvat aurinkokennoista. Aurinkopaneelien toiminta perustuu fotoneja absorboiviin materiaaleihin, jonka ansiosta elektronit virittyvät ja liikkuvat rakenteessa, luoden sähkövirtaa (yksinkertaistetusti). Aurinkopaneelien sähköntuottotehokkuus on kuitenkin vähäistä, yleensä 9–17% [20]. Tämän takia aurinkopaneelien tehokkuutta pyritään parantamaan. Kehitys keskittyy moneen eri alaan, mutta tässä tutkielmassa keskitymme eksitoni-polaritonien mahdollisuuksiin orgaanisissa aurinkokennoissa (OSC; ”organic solar cell”).

Kuten aiemmin ohutkalvofilttereiden tapauksessa, myös aurinkokennoissa voidaan mahdollisesti hyödyntää kulmadispersion hallitsemista, jolloin kenno olisi riippumaton valon tulokulmasta ja voisi absorboida aina halutun resonoivan aallonpituuden.

Lisäksi polaritonin absorboiman spektrin kontrollointia vahvan kytkennän avulla on käytetty fotonin energiahäviöiden pienentämiseksi. Pieneneminen johtuu absorboivan aineen valenssivyön ja johtovyön välin pienenemistä sekä varauksien siirtymishäviöiden pienenemisestä [21].

Tavanomaisiin aurinkokennoihin nähden rakennetta tai rakenteen materiaaleja ei tarvitse muuttaa paljoa voidaksemme kytkeä eksitonin ja kaviteettimoodin, koska normaalissa kennossa elektrodina toimivat metallit toimivat kytkeytyneessä aurinkokennossa elektrodin lisäksi myös peileinä.

5 Johtopäätökset

Tämän tutkielman tarkoituksena on perehdyttää lukija orgaanisten eksitoni-polaritonien teoreettiseen ymmärrykseen, niiden ominaisuuksiin, sekä mahdollisiin sovelluksiin. Eksitoni-polaritonien teoria on monimutkaista ja siksi suuri osa tutkielmasta on teoreettista taustaa.

Tutkielmassa käytiin ensin läpi mitä valon ja materian välisellä kytkeytymisellä tarkoitetaan ja mitä mahdollisia vuorovaikutuksia kaksitasosysteemin ja fotonin välillä voi tapahtua. Vahvempien kytkentävahvuuksien saavuttamiseksi tutkielmassa käytiin läpi kaviteetit. Ymmärtääkseen paremmin vahvaa kytkentää, käytiin läpi Hamiltonit. Kytkentävahvuuden ollessa tarpeeksi suuri, eli suurempi kuin häviönopeudet, päästään vahvalle kytkentäalueelle, jolloin syntyy uusi hybriditila, eli eksitoni-polaritoni. Ultravahvalle alueelle päästään kun kytkentävahvuus on verrannollinen ominaistajuuksiin nähden. Lopuksi teoreettisessa osuudessa käytiin läpi kuinka eri kytkentävahvuudet vaikuttavat dispersioon.

Seuraavaksi käytiin läpi, kuinka polaritoneja voidaan havaita, sekä kuinka virityserolla on vaikutusta dispersioon.

Orgaanisten molekyylien ominaisuuksien ansiosta polaritonien tutkimisesta on tullut viime vuosikymmenten aikana huomattavasti helpompaa, koska ne ovat mahdollistaneet vahvan ja ultravahvan kytkennän huoneenlämmössä. Orgaaniset molekyylit esimerkiksi vuorovaikuttavat todennäköisemmin kaviteettimoodin kanssa mahdollistaen vahvempia kytkentävahvuuksia. Silti vahva ja ultravahva kytkentäalue on tänäkin päivänä suhteellisen hankala tavoittaa. Alan keskeisten tutkimusten löydösten toistaminen on osoittautunut myös hankalaksi, eikä yksinkertaisimpiakaan systeemeitä ymmärretä täysin [8].

Siitä huolimatta kytkennän tutkimisen myötä on syntynyt uusia sovelluksen kohteita valon hallitsemisesta ohutkalvoissa kvanttilaskentaan [22]. Tässä tutkielmassa käytiin läpi kuinka ultravahvaa kytkentää voidaan hyödyntää dispersiorajan ylittämisessä.

Ohutkalvofilttereiden rajoittavana tekijänä on usein läpäisevän valon sinisiirtymä tulokulman kasvaessa. Ultravahvan kytkennän avulla ohutkalvofilttereistä voidaan kuitenkin tehdä miltei tulokulmasta riippumattomia sekä läpäisy-spektriltään erittäin kapeita.

Ultravahvan kytkennän saavuttaminen on haastavaa, eikä sitä ymmärretä vielä täysin. Tämä tieteenala on kuitenkin kehittynyt paljon viime vuosikymmenten aikana. Tämän johdosta

ymmärrettyjen ominaisuuksien ympärille on syntynyt erilaisia mahdollisia sovelluksen kohteita. Ala on kehittynyt todella paljon, mutta silti on vielä paljon tutkittavaa.

Lähteet

- [1] S. Haroche, “Nobel Lecture: Controlling photons in a box and exploring the quantum to classical boundary,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 85, no. 3, pp. 1083–1102, Jul. 2013, doi: 10.1103/RevModPhys.85.1083.
- [2] D. N. Basov, A. Asenjo-Garcia, P. J. Schuck, X. Zhu, and A. Rubio, “Polariton panorama,” *Nanophotonics*, vol. 10, no. 1, pp. 549–577, Nov. 2020, doi: 10.1515/nanoph-2020-0449.
- [3] R. Bhuyan *et al.*, “The Rise and Current Status of Polaritonic Photochemistry and Photophysics,” *Chem. Rev.*, vol. 123, no. 18, pp. 10877–10919, Sep. 2023, doi: 10.1021/acs.chemrev.2c00895.
- [4] P. Forn-Díaz, L. Lamata, E. Rico, J. Kono, and E. Solano, “Ultrastrong coupling regimes of light-matter interaction,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 91, no. 2, p. 025005, Jun. 2019, doi: 10.1103/RevModPhys.91.025005.
- [5] W. D. Callister, *Materials Science and Engineering*. New York: Wiley, 2019.
- [6] A. Mischok, B. Siegmund, F. Le Roux, S. Hillebrandt, K. Vandewal, and M. C. Gather, “Breaking the angular dispersion limit in thin film optics by ultra-strong light-matter coupling,” *Nat Commun*, vol. 15, no. 1, p. 10529, Dec. 2024, doi: 10.1038/s41467-024-54623-1.
- [7] K. J. Vahala, “Optical microcavities,” *Nature*, vol. 424, no. 6950, pp. 839–846, Aug. 2003, doi: 10.1038/nature01939.
- [8] T. Khazanov, S. Gunasekaran, A. George, R. Lomlu, S. Mukherjee, and A. J. Musser, “Embrace the darkness: An experimental perspective on organic exciton–polaritons,” *Chemical Physics Reviews*, vol. 4, no. 4, p. 041305, Dec. 2023, doi: 10.1063/5.0168948.
- [9] M. Sánchez-Barquilla, A. I. Fernández-Domínguez, J. Feist, and F. J. García-Vidal, “A Theoretical Perspective on Molecular Polaritonics,” *ACS Photonics*, vol. 9, no. 6, pp. 1830–1841, Jun. 2022, doi: 10.1021/acsp Photonics.2c00048.
- [10] B. W. Shore and P. L. Knight, “The Jaynes-Cummings Model,” *Journal of Modern Optics*, vol. 40, no. 7, pp. 1195–1238, Jul. 1993, doi: 10.1080/09500349314551321.
- [11] D. G. Lidzey, D. D. C. Bradley, M. S. Skolnick, T. Virgili, S. Walker, and D. M. Whittaker, “Strong exciton–photon coupling in an organic semiconductor microcavity,” *Nature*, vol. 395, no. 6697, pp. 53–55, Sep. 1998, doi: 10.1038/25692.
- [12] S. Gambino *et al.*, “Exploring Light–Matter Interaction Phenomena under Ultrastrong Coupling Regime,” *ACS Photonics*, vol. 1, no. 10, pp. 1042–1048, Oct. 2014, doi: 10.1021/ph500266d.
- [13] S. Ghosh *et al.*, “Microcavity exciton polaritons at room temperature,” *Photonics Insights*, vol. 1, no. 1, p. R04, 2022, doi: 10.3788/PI.2022.R04.
- [14] S. Kéna-Cohen, S. A. Maier, and D. D. C. Bradley, “Ultrastrongly Coupled Exciton–Polaritons in Metal-Clad Organic Semiconductor Microcavities,” *Advanced Optical Materials*, vol. 1, no. 11, pp. 827–833, Nov. 2013, doi: 10.1002/adom.201300256.
- [15] C. J. Hood, H. J. Kimble, and J. Ye, “Characterization of high-finesse mirrors: Loss, phase shifts, and mode structure in an optical cavity,” *Phys. Rev. A*, vol. 64, no. 3, p. 033804, Aug. 2001, doi: 10.1103/PhysRevA.64.033804.
- [16] M. Herira, H. Boustanji, and S. Jaziri, “Impact of temperature on exciton-cavity detuning and polariton relaxation kinetics in monolayer Tungsten Disulphide (W S 2) based microcavity,” *Superlattices and Microstructures*, vol. 120, pp. 629–636, Aug. 2018, doi: 10.1016/j.spmi.2018.06.032.
- [17] F. Le Roux, R. A. Taylor, and D. D. C. Bradley, “Enhanced and Polarization-Dependent Coupling for Photoaligned Liquid Crystalline Conjugated Polymer Microcavities,” *ACS Photonics*, vol. 7, no. 3, pp. 746–758, Mar. 2020, doi: 10.1021/acsp Photonics.9b01596.
- [18] N. Takada, T. Kamata, and D. D. C. Bradley, “Polariton emission from polysilane-based organic microcavities,” *Applied Physics Letters*, vol. 82, no. 12, pp. 1812–1814, Mar. 2003, doi: 10.1063/1.1559950.
- [19] J. B. Khurgin, “Expanding the Photonic Palette: Exploring High Index Materials,” *ACS Photonics*, vol. 9, no. 3, pp. 743–751, Mar. 2022, doi: 10.1021/acsp Photonics.1c01834.

- [20] R. Venkateswari and S. Sreejith, “Factors influencing the efficiency of photovoltaic system,” *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, vol. 101, pp. 376–394, Mar. 2019, doi: 10.1016/j.rser.2018.11.012.
- [21] C. Bujalance *et al.*, “Ultrastrong Exciton–Photon Coupling in Broadband Solar Absorbers,” *J. Phys. Chem. Lett.*, vol. 12, no. 43, pp. 10706–10712, Nov. 2021, doi: 10.1021/acs.jpcllett.1c02898.
- [22] D. Sanvitto and S. Kéna-Cohen, “The road towards polaritonic devices,” *Nature Mater*, vol. 15, no. 10, pp. 1061–1073, Oct. 2016, doi: 10.1038/nmat4668.