

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03678

研究課題名(和文) 銅ハライド系マイクロキャビティにおける励起子ポラリトン凝縮の制御

研究課題名(英文) Control of exciton-polariton condensation in copper-halide microcavities

研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA, Masaaki)

大阪市立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30172480

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：独自に作製した銅ハライド系マイクロキャビティ(微小共振器)を試料とし、発光分光法を用いて励起子ポラリトン(励起子-光子混成状態)凝縮に関する研究を行った。CuBrマイクロキャビティにおいて、10～140Kの温度領域でポラリトン凝縮を実現し、離調度(励起子とキャビティ光子のエネルギー差)によって凝縮閾値励起強度を制御できることを検証した。さらに、ポラリトン凝縮体の分散関係が、非平衡凝縮特有の非分散性(拡散性ゴールドストーンモード)を示すことを定量的に明らかにした。また、発光ダイナミクスでは、ポラリトン凝縮によって発光の立ち上がり時間と減衰時間が劇的に短くなること(ボソン終状態誘導)を見出した。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the characteristics of exciton-polariton condensation in originally-prepared copper-halide microcavities with the use of photoluminescence (PL) spectroscopy. In CuBr microcavities, we realized the polariton condensation in the temperature range from 10 to 140 K and confirmed that an excitation power density at the condensation threshold is controlled by a detuning value corresponding to the energy difference between the exciton and cavity photon. Moreover, it was quantitatively revealed that the dispersion relation of polariton condensates exhibits a non-dispersive profile peculiar to nonequilibrium condensation: the so-called diffusive Goldstone mode. In addition, we found in the PL dynamics that the PL rise and decay times are dramatically shortened by the polariton condensation, which reflects the bosonic final state stimulation.

研究分野：光物性

キーワード：マイクロキャビティ 銅ハライド 励起子ポラリトン凝縮 発光分光法 凝縮体分散関係 拡散性ゴールドストーンモード ボソン終状態誘導

1. 研究開始当初の背景

半導体マイクロキャビティでは、励起子とキャビティ光子との強結合により、励起子ポラリトン(以下では、キャビティポラリトン、もしくは、単にポラリトンと記す)が形成される。キャビティポラリトンのボース粒子性と光子との混成による極めて軽い有効質量(励起子の 10^{-4} 程度)により、ポラリトン凝縮(ボース凝縮)が生じることが2006年にCdTe系において初めて報告された[1]。その後、GaAs系、GaN系、及び、ZnO系の研究が盛んに行われてきた。しかしながら、研究開始当初、上記の半導体と比較して励起子の安定性(励起子束縛エネルギー)が格段に大きい銅ハライド系(CuBr、CuCl、及び、CuI)マイクロキャビティにおけるキャビティポラリトン凝縮は全く明らかでなかった。キャビティポラリトンを構成する励起子の安定性の観点において、従来の半導体系と銅ハライド系は一線を画すものである。

2. 研究の目的

銅ハライド(CuBr、CuCl、及び、CuI)を励起子活性層とした分布ブラッグ反射鏡(distributed Bragg reflector: DBR)型マイクロキャビティを独自に作製し、発光特性の観点から、次のことを目的として研究を行う。

- (1) CuBr、CuCl、及び、CuIマイクロキャビティにおいて、キャビティポラリトン凝縮を実現する。
- (2) 試料作製段階で離調度(面内波数ベクトル $k_{\parallel}=0$ での励起子とキャビティ光子のエネルギー差)を変化させてポラリトンを構成する光子と励起子の構成比を制御し、それにより励起子ポラリトン凝縮の諸特性[凝縮密度、ポラリトン再構成(ポラリトン-ポラリトン相互作用によるポラリトン分散関係の変化)、凝縮温度]を制御する。
- (3) 励起子ポラリトン凝縮におけるポラリトンの緩和過程について、発光ダイナミクスの観点から明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 試料作製とキャビティポラリトンの評価

銅ハライド(CuBr、CuCl、及び、CuI)を活性層としたDBR型マイクロキャビティを独自に作製した。基板には、(0001)面 Al_2O_3 基板を用いた。DBRとして、2元rfマグネトロンスパッタリング装置を用いて、 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜を作製した。活性層媒質の銅ハライド薄膜の作製には、超高真空蒸着装置を用いた。高精度の膜厚制御を達成するために、薄膜作製過程において、水晶振動子を用いて成長速度のリアルタイムモニターを行った。マイクロキャビティの試料構造は、基板/下部DBR/銅ハライド層/上部DBRとした。構造評価には、X線回折装置、原子間力顕微鏡、触針式膜厚計を用いた。

作製した試料のキャビティポラリトン分散関係を角度分解反射分光法により測定し

た。励起子-光子強結合に関する現象論的ハミルトニアンを用いて分散関係を解析し、キャビティポラリトンの基礎特性[ラビ分裂エネルギー、離調度、光閉じ込め係数(Q 値)]を定量的に評価した。

(2) キャビティポラリトン凝縮の発光特性

ポラリトン凝縮の検証: 受光角度 $\theta=0^\circ$ ($k_{\parallel}=0$)における下枝ポラリトン(lower polariton: LP)発光の励起強度依存性、及び、その温度依存性と離調度依存性を系統的に測定した。励起光源には、パルスYAGレーザー(3倍波:355nm、パルス幅:1ns)を用いた。発光の強度、スペクトル幅、及び、エネルギーの閾値的变化を、ポラリトン凝縮の指標とした。

ポラリトン凝縮体の分散関係: 上記の実験によって凝縮を確認した試料を対象として、凝縮が生じるLPからの発光スペクトルの $\theta(k_{\parallel})$ 依存性を測定し(角度分解発光分光法)、その励起強度依存性から、LP分散関係に対する凝縮の効果を検証した。励起光源は、上記と同じである。

ポラリトン凝縮体の発光ダイナミクス: 上記の実験によって凝縮を確認した試料を対象として、 $\theta=0^\circ$ ($k_{\parallel}=0$)におけるLP発光ダイナミクスの励起強度依存性を測定し、ポラリトン緩和過程に対する凝縮効果を調査した。励起光源には、パルス幅110fsのモード同期Ti:sapphireパルスレーザーを、検出系にはストリークカメラシステム(時間分解能:15ps)を用いた。

4. 研究成果

(1) キャビティポラリトン凝縮の検証、及び、凝縮の離調度依存性と温度依存性

図1は、77KにおけるCuBrマイクロキャビティ(CuBr層厚:有効励起子波長 $\lambda=208\text{nm}$)の $k_{\parallel}=0$ における発光スペクトルの励起密度依存性を示している。この試料の Q 値は 1.4×10^3 、離調度は+14meV、励起子-光子相互作用の強さを表すラビ分裂エネルギーは、CuBrの3種類の励起子(Z_1 、 Z_{12} 、 Z_3)に対して、それぞれ、31、106、83meVという値がキャビティポラリトン分散の解析から得られた。図1から、励起密度 $4.0\text{W}/\text{cm}^2$ において、LP発光バンドの高エネルギー側に閾値特性を持ってB発光バンドが出現することが分かる。このB発光バンドの閾値特性を明確にするために、図2にLPとB発光バンドの(a)積分強度、(b)半値全幅、(c)ピークエネルギーの励起密度依存性を示している。発光強度の閾値的増大(基底状態のポラリトン占有数の劇的増大)、半値全幅の閾値的減少(運動量空間でのポラリトン分布の収縮)、及び、発光エネルギーの閾値的ブルーシフト(基底状態でのポラリトン-ポラリトン相互作用の増大)が明らかである。これらのことは、 $4.0\text{W}/\text{cm}^2$ を閾値としてポラリトン凝縮が生じていること、及び、B発光バンドが凝縮体

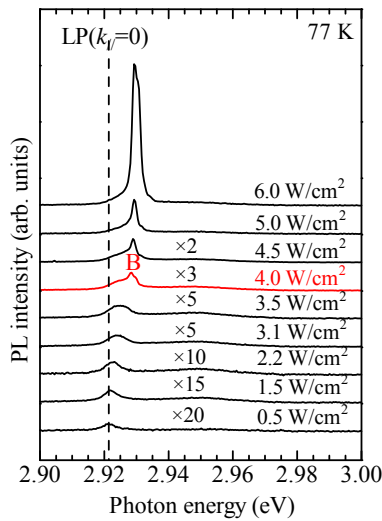


図 1: CuBr マイクロキャビティにおける 77K での $k_{\parallel}=0$ における発光スペクトルの励起密度依存性。

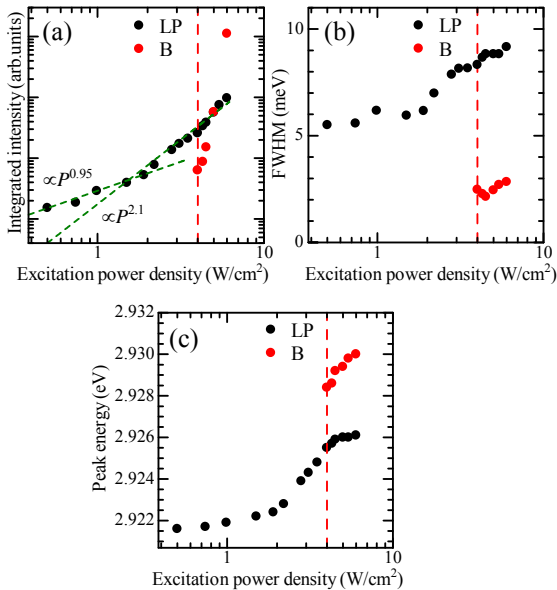


図 2: LP と B 発光バンドの(a)積分強度、(b)半値全幅、(c)ピークエネルギーの励起密度依存性。

を起源としていることを示している。CuI マイクロキャビティに関してもポラリトン凝縮を観測したが、試料の光劣化のために再現性のある定量的なデータが測定できなかった。CuCl マイクロキャビティに関しては、ポラリトン凝縮を観測できなかった。

次に、ポラリトン凝縮の制御に関する成果について述べる。図 3 は、CuBr マイクロキャビティ (CuBr 層厚= λ) における 77K での凝縮閾値励起密度の離調度依存性を示している。試料の Q 値は、離調度によって変動があり、平均値が 9×10^2 程度である。離調度は、キャビティポラリトンにおける励起子と光子の構成比と関係している。離調度がゼロでは、励起子と光子の構成比が 1:1 であり、負の離調度では光子構成比が大きくなり、正の

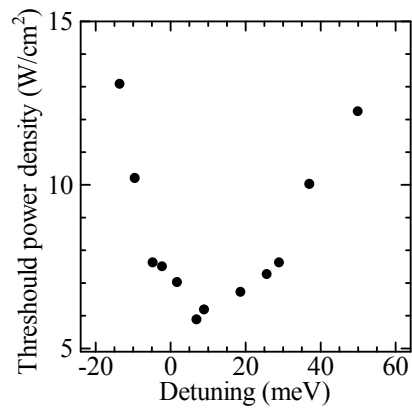


図 3: CuBr マイクロキャビティにおける 77K での凝縮閾値励起密度の離調度依存性。

離調度では励起子構成比が大きくなる。図 3 から、離調度が +5 meV において凝縮閾値励起密度が最小となることが分かる。即ち、励起子と光子の構成比がほぼ 1:1 の場合に凝縮が生じやすいということが明らかである。上記のことは、離調度によってポラリトン凝縮を制御できることを実証している。

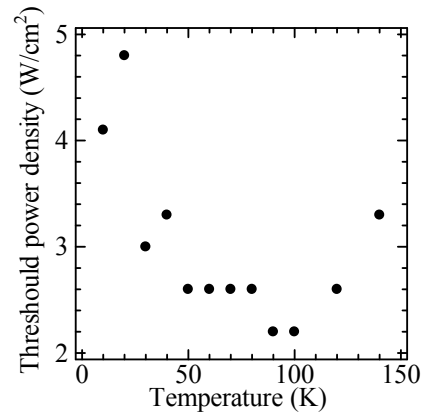


図 4: CuBr マイクロキャビティにおける凝縮閾値励起密度の温度依存性。

図 4 は、CuBr マイクロキャビティ (CuBr 層厚= λ) における凝縮閾値励起密度の温度依存性を示している。試料の Q 値は 1.7×10^3 、離調度は +2 meV である。140K という比較的高温までポラリトン凝縮が生じることを検証した。ここで注目すべきこととして、凝縮閾値励起密度が 100K 近傍で最小となることである。熱統計力学の観点では、凝縮臨界密度は温度上昇に伴って増大する。したがって、凝縮閾値励起密度もそのような傾向を示すことが常識的であるが、図 4 の実験結果は異なっている。この凝縮閾値励起密度の温度依存性について、以下のように考察している。CuBr 結晶の場合、10K 近傍の低温領域では、束縛励起子発光やドナー - アクセプター対発光が主発光バンドとして観測される。そのために、光励起キャリアは不純物に束縛される傾向にあり、キャビティポラリトンを形成するために必要な自由励起子の生成効率が低い。温度上昇に伴い不純物に束縛されたキャリアの熱解離が生じ、自由励起子生成効率

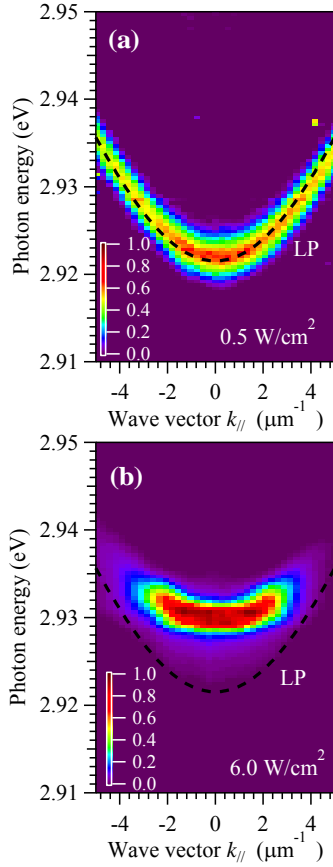


図5: CuBr マイクロキャビティにおける 77K での(a)非凝縮条件と(b)凝縮条件での角度分解発光スペクトルのイメージマップ。

が高くなる。この自由励起子生成効率と凝縮臨界密度とのバランスによって凝縮閾値励起密度の温度依存性が決定され、図4に示したように 100K 近傍で凝縮閾値励起密度が最小になる振る舞いを示したと現象論的に考えられる。

(2) キャビティポラリトン凝縮体の分散関係

熱統計力学の観点から、ポラリトン凝縮は平衡凝縮と非平衡凝縮に分類できる。平衡凝縮体の分散関係は、Bogoliubov モード ($k_||$ が小さい領域では音波に類似した線形的な分散関係) となることが報告されていた[2]。一方、非平衡凝縮体の分散関係は、理論予測はされていたが[3]、実験的には未解明であった。

図5は、CuBr マイクロキャビティ (図1と図2の試料と同じ) における 77K での(a)非凝縮条件 (0.5W/cm^2) と(b)凝縮条件 (6.0W/cm^2) での角度分解発光スペクトルのイメージマップを示している。なお、発光の受光角度 θ と面内波数ベクトル $k_||$ との関係は、次式によって与えられる[4]。

$$k_|| = E_{\text{ph}}(0) \sin \left(\frac{\hbar c \sqrt{1 - \sin^2 \theta}}{n_{\text{eff}}^2} \right) \quad (1)$$

ここで、 $E_{\text{ph}}(0)$ が $k_||=0$ におけるキャビティ光子エネルギー、 c が真空中の光速、 n_{eff} が活性層の有効屈折率である。励起密度 0.5W/cm^2

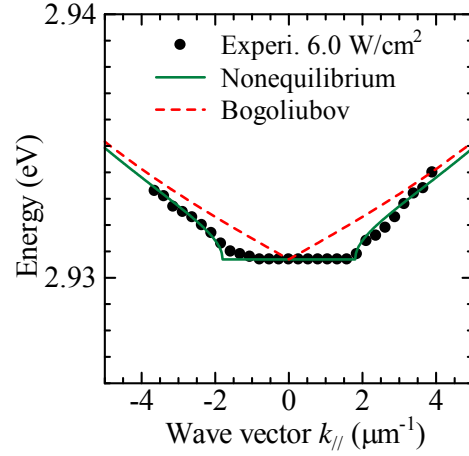


図6: 図5(b)の発光ピークエネルギーの $k_||$ 依存性 (黒丸) 式(2)に基づくフィッティング結果 (実線) 及び、式(3)の Bogoliubov モードの分散関係 (破線)。

の場合、発光バンドのエネルギーの $k_||$ 依存性は、破線で示した LP 分散関係と一致している。一方、励起密度 6.0W/cm^2 の場合、発光バンドのエネルギーが大きく高エネルギーシフトし、 $k_||$ が小さな領域では、フラットな非分散性を示しているのが特徴的である。これは、平衡凝縮体の Bogoliubov モード分散関係とは全く異なっており、研究開始当初は予期していなかった現象である。

以下では、非平衡凝縮体の分散関係の理論[3]に基づいて、実験結果を解析する。分散関係は、以下の式で与えられる。

$$E_{\text{NC}}(k_||) = E_{\text{B}}(0) - i\hbar(2\pi\Gamma) / 2 + \sqrt{[E_{\text{B}}(k_||) - E_{\text{B}}(0)]^2 - \hbar^2(2\pi\Gamma)^2 / 4} \quad (2)$$

ここで、 $E_{\text{B}}(k_||)$ が Bogoliubov モードの分散関係、 Γ が凝縮体の有効緩和速度であり、 $\Gamma=0$ の場合、分散関係は $E_{\text{B}}(k_||)$ となるので、 Γ は系の非平衡性の大きさを反映するパラメータである。 $E_{\text{B}}(k_||)$ は、次式で与えられる。

$$E_{\text{B}}(k_||) = E_{\text{B}}(0) + \sqrt{\frac{\hbar^2 k_||^2}{2M_{\text{LP}}} \left(\frac{\hbar^2 k_||^2}{2M_{\text{LP}}} + 2\hbar\eta \right)} \quad (3)$$

ここで、 M_{LP} が LP の有効質量、 $\hbar\eta$ が凝縮体におけるポラリトン - ポラリトン相互作用エネルギーである。図6は、図5(b)の発光ピークエネルギーの $k_||$ 依存性 (黒丸) 式(2)に基づくフィッティング結果 (実線) 及び、式(3)の Bogoliubov モードの分散関係 (破線) を示している。パラメータ値は、 $\Gamma=5.7 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ 、 $M_{\text{LP}}=3.1 \times 10^{-4} m_0$ (m_0 は自由電子質量)、 $\hbar\eta=3.9 \text{ meV}$ である。凝縮条件における発光ピークエネルギーの $k_||$ 依存性が、式(2)によって良く説明できることが明らかである。即ち、CuBr マイクロキャビティでは、ポラリトンの非平衡凝縮が生じている。非平衡凝縮体の分散関係において、 $k_||$ が小さい領域での非分散性の

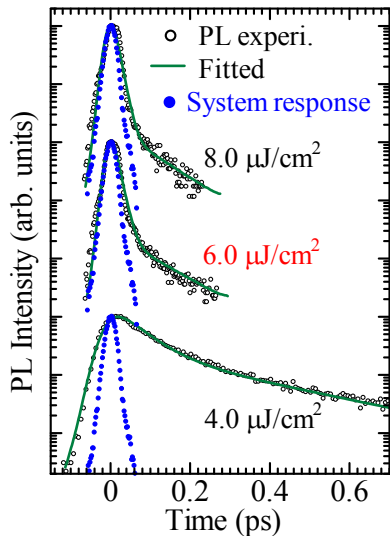


図7: CuBr マイクロキャビティにおける 10K での異なる励起密度における $k_{||}=0$ の発光減衰プロファイル。実線は、式(4)とシステム応答(青丸)をコンボリューションして得られたフィッティング結果を示している。

プロファイルは、拡散性 Goldstone モードと呼ばれる。拡散性 Goldstone モードの領域の外では分散的となり、 $k_{||}$ が大きくなるにしたがって平衡凝縮である Bogoliubov モードに漸近する。このような非平衡凝縮体の分散関係は、本研究によって初めて実験的に検証されたものであり、特筆すべき成果である。また、凝縮体分散関係の温度依存性を測定して解析を行い、非平衡性を反映する Γ 値が温度上昇に伴って大きくなるという結果が得られた。

(3) キャビティポラリトン凝縮体の発光ダイナミクス

ポラリトン凝縮は、発光ダイナミクスに対しても劇的な影響を与える。図7は、CuBr マイクロキャビティ (CuBr 層厚= λ) における 10K での異なる励起密度における $k_{||}=0$ の発光減衰プロファイルを示している。試料の Q 値は 1.7×10^3 、離調度は +12meV である。また、凝縮閾値励起密度は、 $6.0 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ である。発光減衰プロファイルは、立ち上がり成分(r)、速い減衰成分(f)、及び、遅い減衰成分(s)から構成されており、以下の式で表現される。

$$I_{\text{PL}}(t) = -I_r \exp(-t/\tau_r) + I_f \exp(-t/\tau_f) + I_s \exp(-t/\tau_s) \quad (4)$$

図7の実線は、式(4)とシステム応答(青丸)をコンボリューションして得られたフィッティング結果を示している。非凝縮条件の $4.0 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ では、 $\tau_r=15\text{ps}$ 、 $\tau_f=65\text{ps}$ 、 $\tau_s=4.0 \times 10^2 \text{ps}$ である。なお、遅い減衰成分は、ドナー-アクセプター対発光が起源であり、キャビティポラリトンとは関係しない。立ち上がり時間は、ポラリトンの緩和時間に相当し、通常の

フォノン散乱過程と比較すると極めて長いものである。また、速い減衰時間も、ポラリトンの固有寿命 (sub-ps オーダー) よりも極めて長い。このように立ち上がり成分と速い減衰成分が非常に遅くなるのは、キャビティポラリトン分散の $k_{||}$ が大きい領域に存在する励起子的リザーバーでのトラップ効果によるものであると考えられる[5]。

ここで着目すべき現象は、凝縮条件である 6.0 と $8.0 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ において、立ち上がり時間と速い減衰時間が劇的に短くなることである。図7から分かるように、システム応答と重なっており、それらの時間は 2ps 以下である。立ち上がり時間が劇的に短くなるのは、凝縮条件において、ボソン終状態誘導 (bosonic final state stimulation) が生じていることを示唆している。また、速い減衰時間が劇的に短くなるのは、ボソン終状態誘導によって上記の励起子的リザーバーでのトラップ効果が消失し、ポラリトンの固有寿命が発現しているためと考えられる。ボソン終状態誘導は、非平衡凝縮が生じる必要条件であり[6]、上記(2)で述べた非平衡凝縮体の分散関係を発光ダイナミクスの観点から矛盾無く支持している。

<引用文献>

- [1] J. Kasprzak et al., Nature **443**, 409 (2006).
- [2] S. Utsunomiya et al., Nat. Phys. **4**, 700 (2008).
- [3] M. Wouters and I. Carusotto, Phys. Rev. Lett. **99**, 140402 (2007).
- [4] M. S. Skolmick et al., Semicond. Sci. Technol. **13**, 645 (1998).
- [5] S. Christopoulos et al., Phys. Rev. Lett. **98**, 126405 (2007).
- [6] A. Imamoglu et al., Phys. Rev. A **53**, 4250 (1996).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計6件)

Masaaki Nakayama and Kazuki Tamura: Temperature effect on the dispersion relation of nonequilibrium exciton-polariton condensates in a CuBr microcavity, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, pp.053701-1--053701-4 (2018) 査読有り
DOI: 10.7566/JPSJ.87.053701

Masaaki Nakayama, Katsuya Murakami, and Yoshiaki Furukawa: Polariton condensation effects on photoluminescence dynamics in a CuBr microcavity, J. Lumin. **191**, pp.68-72 (2017) 査読有り
DOI: 10.1016/j.jlumin.2017.02.045

Masaaki Nakayama and Masafumi Ueda: Observation of diffusive and dispersive profiles of nonequilibrium

polariton-condensate dispersion relation in a CuBr microcavity, Phys. Rev. B **95**, pp.125315-1--125315-7 (2017) 査読有り
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.125315

Yasuyoshi Mitsumori, Shimpei Matsuura, Shoichi Uchiyama, Keiichi Edamatsu, and Masaaki Nakayama: Cavity effect on a biexciton in a CuCl microcavity, Phys. Rev. B **94**, pp.115308-1--115308-5 (2016) 査読有り
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.115308

Masaaki Nakayama, Katsuya Murakami, and DaeGwi Kim: Blueshifted flat dispersion relation of exciton-polariton condensates in a CuBr microcavity, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, pp.054702-1--054702-7 (2016) 査読有り
DOI: 10.7566/JPSJ.85.054702

Masaaki Nakayama, Katsuya Murakami, and DaeGwi Kim: Polariton dispersion relations under condensation in a CuBr microcavity, Phys. Status Solidi C **13**, pp.81-84 (2016) 査読有り
DOI:10.1002/pssc.201510076

〔学会発表〕(計 12 件)

田村和樹、中山正昭 : CuBr マイクロキャビティにおける励起子ポラリトン非平衡凝縮体の分散関係 II、日本物理学会、2018 年

田村和樹、中山正昭 : CuBr マイクロキャビティにおける励起子ポラリトン非平衡凝縮体の分散関係の温度依存性、第 28 回光物性研究会、2017 年

宇田匠吾、中山正昭 : CuI マイクロキャビティにおける励起子ポラリトン発光ダイナミクス、第 28 回光物性研究会、2017 年

中山正昭、植田誠史 : CuBr マイクロキャビティにおける励起子ポラリトン非平衡凝縮体の分散関係、日本物理学会、2017 年

植田誠史、中山正昭 : CuBr マイクロキャビティにおける励起子ポラリトン凝縮体の分散関係、第 27 回光物性研究会、2016 年

植田誠史、中山正昭 : CuBr マイクロキャビティにおけるポラリトン凝縮体の拡散性 Goldstone モード III、日本物理学会、2016 年

Masaaki Nakayama, Katsuya Murakami, and Yoshiaki Furukawa: Polariton-condensation

effects on photoluminescence dynamics in a CuBr microcavity, 19th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids, 2016 年

植田誠史、中山正昭 : CuBr マイクロキャビティにおけるポラリトン凝縮体の拡散性 Goldstone モード II、日本物理学会、2016 年

植田誠史、中山正昭 : CuBr マイクロキャビティにおけるポラリトン凝縮状態でのポラリトン分散関係、第 26 回光物性研究会、2015 年

Masaaki Nakayama: Exciton-polariton condensation in CuBr microcavities: Photoluminescence dynamics and diffusive Goldstone mode, Green Photonics Workshop on Exciton Polaritons and Their Laser Application, 2015 年

中山正昭、村上勝哉、金大貴 : CuBr 微小共振器におけるポラリトン凝縮状態の拡散型 Goldstone モード、日本物理学会、2015 年

Masaaki Nakayama, Katsuya Murakami, and DaeGwi Kim, Polariton dispersion relations under condensation in a CuBr microcavity, 11th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials, 2015 年

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕
ホームページ等
該当無し。

6. 研究組織

(1)研究代表者

中山 正昭 (NAKAYAMA, Masaaki)
大阪市立大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号 : 3 0 1 7 2 4 8 0