

令和元年8月26日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04003

研究課題名(和文) 半導体微小共振器における複合量子系の結合・干渉ダイナミクス

研究課題名(英文) Coupling and Interference Dynamics of Complex Quanta in Semiconductor Microcavities

研究代表者

溝口 幸司 (Mizoguchi, Kohji)

大阪府立大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10202342

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、光子、励起子、フォノンなどの量子間に生じる結合現象やFano的干渉現象の関係を明らかにするため、様々な試料構造を有するCuCl半導体微小共振器における光学応答スペクトルについて研究を行った。その結果、緩和時間を持つ量子間で相互作用がある系で、お互いのエネルギーが近くなると、量子状態間の結合状態の変化に関わらず、非対称な光学応答スペクトルが現れることを見出した。新たに構築した複素スペクトル理論を基に表される現象論的非エルミート有効ハミルトニアンを用いることで、半導体微小共振器に観測されるピークエネルギー、半値幅およびスペクトル形状の入射角依存性が説明できることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

様々な緩和時間を有する量子間で相互作用がある場合、量子間で結合力の強弱に関わらず、量子間のエネルギーが共鳴状態に近くなると、光学スペクトルは非対称なスペクトルとして観測されることが明らかになった。この結果は、不連続準位と連続準位との相互作用によって生じるFano干渉の非対称なスペクトルの出現と同様に、不連続準位間でも非対称なスペクトルが現れることを示している。非対称性の度合いは観測している環境に依存するが、この非対称なスペクトルの出現は普遍的な現象であることから、今後種々の結合状態の解明に役立つと考えられる。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the optical response spectra of the CuCl semiconductor microcavities with various cavity structures, in order to reveal the relationship between coupling and Fano-like interference phenomena in various quanta, such as photon, exciton, phonon, and so on. We indicate that in the interaction system between quantum states with the different relaxation rates, the asymmetric optical spectra are observed when the energies of the quantum states are close to each other, regardless of the phase change between the strongly coupling states and weakly coupling states. It is found that the incident angle dependence of the peak energy, spectral width, and spectral profile observed in the CuCl semiconductor microcavities can be explained by using the phenomenologically non-Hermitian effective Hamiltonian represented on the basis of the complex spectrum theory constructed in this study.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 微小共振器 結合状態 量子閉じ込め Fano的干渉

1. 研究開始当初の背景

半導体微小共振器(図 1)には、光と励起子が強結合した共振器ポラリトンが観測される。共振器ポラリトンの量子準位の中で2つの準位を超短パルスレーザーで同時に励起することで、2準位間で生じる量子ビート(ラビ振動)が観測される。この2準位間の量子ビートに関する研究は国内外で広く行われており、超高速現象の研究分野において話題となっている。一般に、寿命が十分に長い2つの量子状態が共鳴的に相互作用する場合、エネルギー準位同士が反発(準位反交差)し、結合モードが生じる。例えば、GaAs/AlAs 多重量子井戸構造試料において、重い正孔と軽い正孔の励起子間で励起子量子ビートが観測され、この励起子量子ビートとコヒーレントフォノンとの共鳴的結合の結果、準位反発した結合モードが生じることを見出している。

一方、寿命が大きく違う2つの量子状態間では、新たな結果が生じる。最近、我々は、CuCl 半導体微小共振器において、世界で初めて、寿命の短いラビ振動と寿命の長いコヒーレントフォノンによる2つの量子振動間の結合を観測し、コヒーレントフォノンがラビ振動によって増強されることを見出した。また、得られた時間領域信号のフーリエ変換スペクトルから、ラビ振動数(ω_{RO})をフォノン振動数(ω_{LO})に近づけることで、コヒーレントフォノンのスペクトルが非対称化する Fano 干渉に似た現象を発見している(図 2)。この Fano 的干渉現象は、現象論的には、ラビ振動の寿命が短いことによるブロードなラビ振動のスペクトルに、シャープなコヒーレントフォノンが重なることで生じたと考えられる。2量子振動間の相互作用によって生じる通常の準位反発を生む結合現象と、我々が得た Fano 的干渉現象との関係を明らかにすることが、本研究の主たる目的である。

2. 研究目的

本研究では、半導体微小共振器における、ラビ振動とコヒーレントフォノンによる2量子振動間で生じる Fano 的干渉現象と準位反交差を生む結合現象の間の変移を明らかにし、2量子振動間結合のコヒーレント制御への展開を目指す。特に、理論と実験が協働して、微視的立場から光子・励起子・フォノンからなる複合量子系の結合・干渉ダイナミクスを解明する。2量子振動間に生じる干渉現象と結合現象の間の変移は、量子振動間の結合力および量子振動の緩和時間に関係していると考えられる。そこで、本研究目的を達成するために、下記に示す研究課題を行う。主対象試料は、多様な試料構造を作製可能であり、結合現象と干渉現象の間の変移を系統的に研究できる優れた舞台である銅ハライド半導体微小共振器を用いる。

1. 2量子振動間の結合力と Fano 的干渉現象の解明
2. 2量子振動間の干渉現象と結合現象の間の変移の解明
3. 2量子振動間結合のコヒーレント制御への展開を検討

3. 研究の方法

半導体微小共振器において、「ラビ振動とコヒーレントフォノンによる2量子振動間で生じる Fano 的干渉現象と準位反交差を生む結合現象の間の変移を明らかにし、2量子振動間結合のコヒーレント制御を目指すこと」を目的に、実験研究グループと理論研究グループが連携しつつ、3年計画で本研究を遂行する。本研究期間を通じて、目的にあわせた種々の構造の銅ハライド微小共振器を作製する。

1. 銅ハライド半導体微小共振器を主対象に、2量子振動間の結合力と Fano 的干渉現象の解明することを目的に、
 - ・種々の共振器層構造を有する半導体微小共振器を作成し、Fano 的干渉現象の起源を

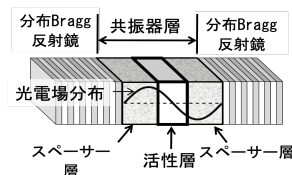


図 1. 半導体微小共振器試料の模式図

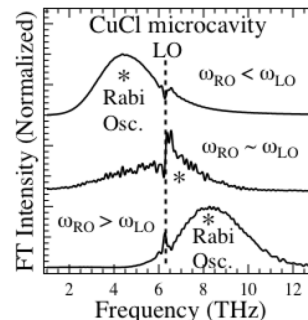


図 2. 半導体微小共振器において、ラビ振動数を変えたときの、時間領域信号のフーリエ変換スペクトル。 ω_{RO} と ω_{LO} はそれぞれラビ振動数およびフォノン振動数を示す。

探る

- 光-励起子-フォノン複合量子系における光学応答理論を構築する。
- 2. 量子振動間で生じる干渉現象と結合現象の関係について明らかにすることを目的に、
 - 共振器層内の光子の閉じ込め度合い(Q 値)や共振器層の膜厚を変えた銅ハライド微小共振器を用い、干渉現象と結合現象の間の変移について調べる。
 - 複合量子系の緩和ダイナミクスに関する減衰理論の構築する
- 3. ダブルパルス励起による2量子振動間の結合性のコヒーレント制御について検討する。

4. 研究成果

4-1)ラビ振動とコヒーレントフォノン間の結合の要因について

半導体微小共振器に観測されるラビ振動とコヒーレントフォノン間で生じる結合の要因を明らかにすることを目的に研究を行った。

半導体微小共振器において、共振器層内の CuCl 活性層の位置や活性層厚を変えた試料(図 3)を作製し、その試料におけるラビ振動とコヒーレントフォノン間の結合ダイナミクスについて、角度分解透過型 Pump-probe 法を用いて研究を行った。その結果、活性層の配置を共振器層内の光の電場分布に対して節の位置から腹の位置に変えることで、コヒーレントフォノンの強度(振動振幅)が 10 倍以上(3 倍以上)に増幅されることを見出した(図 4)。このコヒーレントフォノン振動の増幅は、共振器層内の電場振幅と励起子波動関数との重なり度に起因しているためと考えられる。すなわち、ラビ振動とコヒーレントフォノンの結合は、共振器層に閉じ込められた光電場、励起子、および、フォノンによる各波動関数の空間分布の重なりに起因しているためと考えられる。

また、GaAs/AlAs 多重量子井戸構造において、励起子量子ビートとコヒーレントフォノン間の結合について研究を行った。その結果、半導体微小共振器におけるラビ振動-コヒーレントフォノン間結合と同様に、励起子量子ビートとコヒーレントフォノンの間にも分極相互作用による弱結合が生じていることがわかった。

4-2)Fano 共鳴に関する理論構築, および, 複素スペクトル理論の構築

光子・励起子・フォノンによる複合量子系の緩和ダイナミクスを理論的に明らかにするため、緩和時間を議論することが可能な量子 Liouville 方程式を基に、微視的立場から、不連続準位と連続準位間で生じる Fano 共鳴に関する理論構築を行った。

また、緩和速度(または散逸速度)が異なる2つの不連続準位間において、環境系まで含めた全系に対する非エルミートハミルトニアンに基づき、量子間の結合状態に関する複素スペクトル理論の構築を行った。散逸効果が大きい系において、微視的原理から導かれた非エルミート有効ハミルトニアン固有値および複素固有ベクトルが、それぞれ、測定で観測されるスペクトルのピークエネルギーや半値幅、および、スペクトル形状に、顕著に現れることを示した。

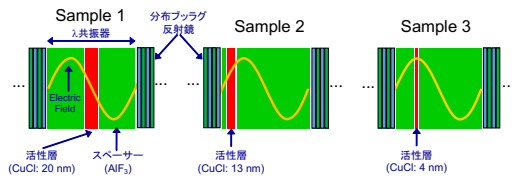


図3. 3種類のCuCl 微小共振器の模式図。青色の層はPbCl₂、緑色の層はAlF₃、赤色の層はCuCl、黄実線は共振器モードの光電場の空間構造を表している。分布ブラッグ反射鏡はPbCl₂ とAlF₃での多層膜で構成されている。試料の共振器層厚は全てλの共振器層厚である(λ=387 nm)。CuCl 活性層は、それぞれ、(試料1)共振器モードの節の位置、(試料2)共振器モードの腹と節の中間の位置、(試料3)共振器モードの腹の位置に作製した。

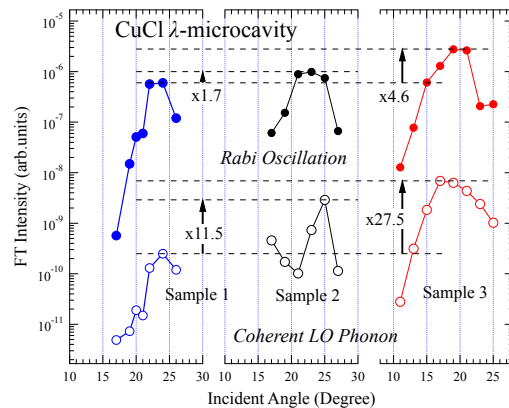


図4. Rabi 振動(上部)とコヒーレントLOフォノン(下部)のフーリエ変換強度の入射角度依存性。共振器構造は、図3の試料構造と同じである。

4-3) 量子間に生じる干渉現象と結合現象の関係

半導体微小共振器において、共振器層内の光子の閉じ込め度合いを示す Q 値を変えた試料、および、共振器層の厚さを変えた試料を作製し、それらの試料における角度分解透過スペクトルを測定することで、光子と励起子との間の結合状態の変化について研究を行った。その結果、共振器層厚と分布ブラッグ反射鏡の周期数を変えることで、光子と励起子との間の結合状態が劇的に変化することを見出した(図 5a)。特に、試料構造に依存して、共振器ポラリトンモードの有無が生じることが明らかとなった。これは、弱結合状態と強結合状態の間の変遷を意味している。また、共振器ポラリトンモードによる透過スペクトルが、入射角とともに、対称形状と非対称形状の間で変化することを見出した(図 5b)。理論グループから提唱された微視的原理に基づく複素スペクトル理論(不連続準位間の結合を表す現象論的非エルミート有効ハミルトニアン)を用いた解析を行うことで、共振器ポラリトンモードの共鳴エネルギーと半値幅の入射角依存性(図 6)、および、そのスペクトル形状の変化が説明できることを見出した。

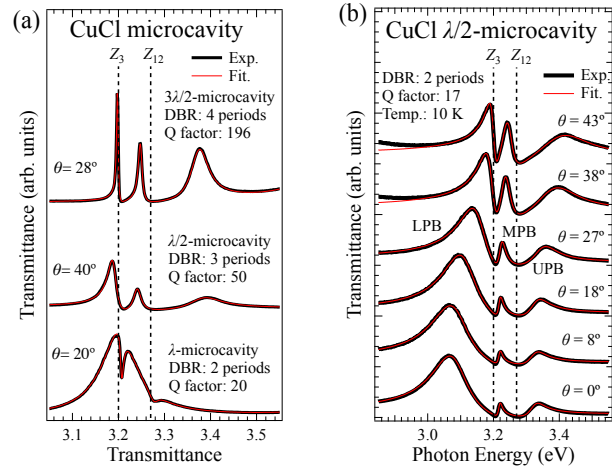


図 5. (a) 種々の共振器構造を有する CuCl 微小共振器における透過スペクトル。 θ は、入射角を示す。(b) CuCl $\lambda/2$ -微小共振器の角度分解透過スペクトル。LPB, MPB, UPB はそれぞれ、Lower Polariton Branch, Middle Polariton Branch, Upper Polariton Branch を示す。また、縦破線は Z_3 励起子および Z_{12} 励起子のエネルギーを示す。

4-4) ダブルパルス励起による量子間の結合性のコヒーレント制御についての検討

ダブルパルス励起による 2 つのコヒーレントフォノン間の制御に関する理論を構築し、実験結果との比較検討を行った。その結果、理論計算から得られた、ダブルパルス間の時間差に対するコヒーレントフォノンの強度変化や位相の変化が実験結果と一致することがわかった。

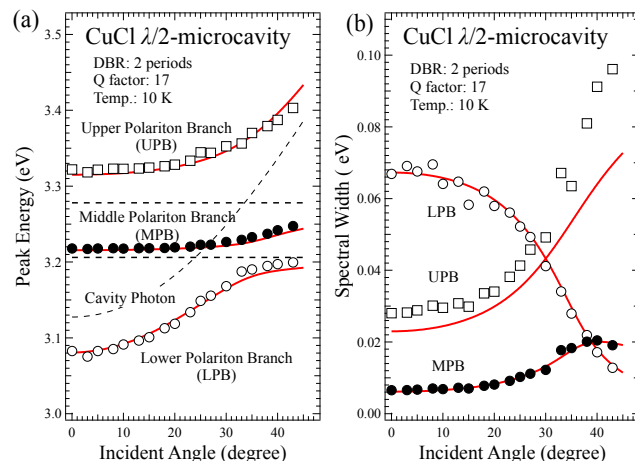


図 6. CuCl $\lambda/2$ -微小共振器の角度分解透過スペクトルに観測される各ポラリトン分枝のピークエネルギーの入射角依存性(a)と、半値幅の入射角依存性(b)。横破線は Z_3 励起子および Z_{12} 励起子のエネルギーを示し、破線の曲線は、共振器光子の入射角依存性を示す。LPB, MPB, UPB はそれぞれ、Lower Polariton Branch, Middle Polariton Branch, Upper Polariton Branch を示す。また、実線の曲線は、現象論的非エルミート有効ハミルトニアンを用いて、フィッティングした結果を示す。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 12 件)

1. T. Yokoyama, T. Nishida, G. Oohata and K. Mizoguchi, "Q-factor dependence of angle-resolved transmission spectra in CuCl microcavities", *Journal of Physics: Conf. Series*, **1220**, 012049(1)-(4) (2019). DOI:10.1088/1742-6596/1220/1/012049 (査読有)
2. T. Tsuji, G. Oohata, and K. Mizoguchi, "Nonlinear polarization optical response to entangled state of biexciton", *Journal of Physics: Conf. Series*, **1220**, 012032(1)-(4) (2019). DOI: 10.1088/1742-6596/1220/1/012032 (査読有)

3. S. Watanabe, T. Kawai, and K. Mizoguchi, “Energy relaxation from STE to In^+ centers in $\text{NaI}:\text{In}^+$ crystals”, *Journal of Physics: Conf. Series*, **1220**, 012031(1)-(4) (2019). DOI:10.1088/1742-6596/1220/1/012031 (査読有)
4. Hidemasa Yamane and Satoshi Tanaka, “Ultrafast Dynamics of High-Harmonic Generation in Terms of Complex Floquet Spectral Analysis”, *Symmetry* **10**, 313(1)-(18) (2018). DOI:10.3390/sym10080313 (査読有)
5. H. Sasaki, R. Tanaka, Y. Okano, F. Minami, Y. Kayanuma, Y. Shikano, and K.G. Nakamura, “Coherent control theory and experiment of optical phonons in diamond”, *Scientific Reports*, **8**, 9609(1)-(9) (2018). DOI:10.1038/s41598-018-27734-1 (査読有)
6. Satoshi Tanaka, Taku Fukuta, and Tomio Petrosky, “Study of Fano Resonance in the Core-Level Absorption Spectrum in Terms of Complex Spectral Analysis”, *Springer Series in Optical Sciences book series*, Vol. 219, pp.261-281 (2018). ISBN:978-3-319-99731-5 (査読有)
7. S. Murata, S. Aihara, S. Tokuda, K. Iwamitsu, K. Mizoguchi, I. Akai, and M. Okada, “Analysis of Coherent Phonon Signals by Sparsity-promoting Dynamic Mode Decomposition”, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 054003(1)-(5) (2018). DOI:10.7566/JPSJ.87.054003 (査読有)
8. Taku Fukuta, Savannah Garmon, Kazuki Kanki, Ken-ichi Noba, and Satoshi Tanaka, “Fano absorption spectrum with the complex spectral analysis”, *Phys. Rev. A* **96**, 052511(1)-(14) (2017). DOI: 10.1103/PhysRevA.96.052511 (査読有)
9. Y. Yamamoto, G. Oohata, and K. Mizoguchi, “Quantitative characterization of highly efficient correlated photon-pair source using biexciton resonance”, *Opt. Express* **24**, pp.6034-6040 (2016). DOI:10.1364/OE.24.006034 (査読有)
10. H. Shimizu, G. Oohata, Y. Yamamoto, and K. Mizoguchi, “Collinear and Degenerate Polariton Pair Emission via Biexciton-Resonant Hyper-Parametric Scattering”, *phys. stat. solidi (c)* **13**, pp.117-120, (2016). DOI 10.1002/pssc.201510150 (査読有)
11. A. Iguchi, T. Kawai, and K. Mizoguchi, “Energy transfer between Tl^+ -type impurities in NaCl crystals”, *phys. stat. solidi (c)* **13**, pp.85-88 (2016). DOI 10.1002/pssc.201510149 (査読有)
12. Satoshi Tanaka, Savannah Garmon, Kazuki Kanki, and Tomio Petrosky, “Higher-order time-symmetry-breaking phase transition due to meeting of an exceptional point and a Fano resonance”, *Phys. Rev. A* **96**, 022105(1)-(11) (2016). DOI: 10.1103/PhysRevA.94.022105 (査読有)

[学会発表] (計 37 件)

1. 大島悟郎, 「光子・励起子・フォノン間の結合状態に起因して現れる非対称スペクトルと非エルミート光応答」, 日本物理学会第74回年次大会(2019年3月)(招待講演).
2. 田中智, 神吉一樹, 山根秀勝, 「外場駆動された双極子振動子からの動的カシミール光子放出」, 日本物理学会第74回年次大会(2019年3月).
3. 横山大樹, 西田拓哉, 大島悟郎, 溝口幸司, 「様々な共振器構造を持つ CuCl 微小共振器における角度分解透過スペクトルのQ値依存性」, 第29回光物性研究会(2018年12月).
4. 山根秀勝, 野場賢一, Tomio Petrosky, 田中智, 「駆動2準位系の高次サイドバンド発生におけるファノプロファイル形成ダイナミクス」, 日本物理学会2018秋季大会(2018年9月).
5. Tanaka Satoshi, Yamane Hidemasa, Tomio Petrosky, “Ultrafast Dynamics of High-Harmonic Generation with Floquet Complex Spectral Analysis”, *The 37th JSST Annual International Conference on Simulation Technology (JSST2018)*, (Muroran, Japan, 2018年9月), (Invited).
6. Y. Kayanuma and K.G. Nakamura, “Quantum Path Interference by Dual-Pulse Pumping reveals the Generation Dynamics of Phonons in Solids”, *International Conference 2018 Non-equilibrium Dynamics of Condensed Matter in the Time Domain*, (Kerkrade, Netherland, 2018年9月).
7. Yamane Hidemasa, Tanaka Satoshi, “Dissipative Quantum dynamics of High-Harmonic Generation”, *The 1st UJN-IMS-SKKU Symposium on Chemistry and Materials*, (Jinan, China, 2018年8月), (Invited).
8. Y. Kayanuma and K. Nakamura, “Ultrafast quantum-path interferometry by phase-locked dual-pulse pumping in n-GaAs”, *The 12th International Conference on Excitonic and*

Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON2018), (Nara, Japan, 2018年7月).

9. T. Yokoyama, T. Nishida, G. Oohata and K. Mizoguchi, “Q-factor dependence of angle-resolved transmission spectra in CuCl microcavities”, The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON2018), (Nara, Japan, 2018年7月).
 10. Y. Kayanuma, “Dual-Pulse Quantum Path Interference Reveals the Generation Dynamics of Coherent Phonons”, The 9th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Laser Science (STAR9) (Nasu, Japan, 2018年5月).
 11. 大島悟郎, 大西洋平, 田中智, 溝口幸司, 「多重量子井戸における励起子量子ビートとコヒーレントフォノンの結合ダイナミクス:非エルミート・ハミルトニアンを用いた解析」, 日本物理学会第73回年次大会(2018年3月).
 12. 西田拓哉, 大島悟郎, 田中智, 溝口幸司, 「CuCl λ -微小共振器における角度分解透過スペクトルのQ値依存性:非エルミート・ハミルトニアンを用いた解析」, 日本物理学会第73回年次大会(2018年3月).
 13. 西田拓哉, 大島悟郎, 溝口幸司, 「CuCl λ -微小共振器における角度分解透過スペクトルのQ値依存性」, 第28回光物性研究会(2017年12月).
 14. 森田大地, 田中智, Savannah Garmon, Tomio Petrosky, 溝口幸司, 萱沼洋輔, 「特異な複素スペクトル構造を反映した半導体微小共振器励起子ポラリトンの透過率」, 日本物理学会第72回年次大会(2017年3月).
 15. 大西洋平, 溝口幸司, 「多重量子井戸構造における量子ビートとコヒーレントフォノン間の結合状態の研究」, 日本物理学会2016年秋季大会(2016年09月).
 16. 岩佐翔平, 大島悟郎, 溝口幸司, 「弱結合・強結合共存系を有するCuCl微小共振器における発光の検出角度依存性」, 日本物理学会2016年秋季大会(2016年9月).
- (他 21 件)

〔図書〕(計 0 件)

ナシ

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

ナシ

○取得状況(計 0 件)

ナシ

〔その他〕

ホームページ等: <http://www.p.s.osakafu-u.ac.jp/~hikari/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

- ・研究分担者氏名: 大島 悟郎, ローマ字氏名: Oohata Goro
所属研究機関名: 大阪府立大学, 部局名: 大学院理学系研究科
職名: 准教授, 研究者番号: 10464653
- ・研究分担者氏名: 田中 智, ローマ字氏名: Tanaka Satoshi
所属研究機関名: 大阪府立大学, 部局名: 大学院理学系研究科
職名: 教授, 研究者番号: 80236588

(2) 研究協力者

- ・研究協力者氏名: 萱沼 洋輔, ローマ字氏名: Kayanuma Yosuke
所属研究機関名: 東京工業大学, 部局名: フロンティア材料研究所
職名: 特任教授, 研究者番号: 80124569