

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月12日現在

機関番号：24403

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22740202

研究課題名（和文）半導体微小共振器における励起子-光子相互作用の精密制御と新しい光学応答の探求

研究課題名（英文）Precise control of exciton-photon interaction and exploring novel optical response in semiconductor microcavities

研究代表者

大島 悟郎 (OOHATA GORO)

大阪府立大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：10464653

研究成果の概要（和文）：半導体微小共振器では、励起子（電子・正孔対）と光を共にナノサイズの微小領域に閉じ込めることにより、励起子-光子の結合状態である共振器ポラリトンが実現され、様々な新奇な光学応答が期待される。しかし、ワイドギャップ半導体を用いた共振器では未だその詳細が明らかにされていない。本研究では、CuCl 微小共振器における共振器ポラリトンについて、顕微分光測定や、超高速ダイナミクスの測定など多方面の観点から共振器ポラリトンの精密な状態測定を行い、その制御を可能にした。

研究成果の概要（英文）：In the semiconductor microcavities, cavity polariton states are realized via confinement of excitons (electron-hole pairs) and photons, and the novel optical response is expected. However, the detailed properties of cavity polariton in “wide gap” semiconductor microcavity have been not clear. In this work, the states of the cavity polariton in CuCl microcavities was measured and analyzed precisely by using microscopic spectroscopy and ultrafast dynamics measurement. From the results, the control of the polariton states was achieved.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：光物性, 励起子, 半導体微小共振器, 共振器ポラリトン

## 1. 研究開始当初の背景

半導体微小共振器では、光場を半導体中に局在化させることによって、励起子-光子相互作用を制御できる。これは、今まで盛んに行われてきた電子系（特に励起子）の量子的

な閉じ込めだけでなく、光場の方も積極的に制御し閉じ込めることに対応する。そのため、新しい物理現象が期待できる系として近年注目されている。特に、共振器に局在した光と励起子のコヒーレントな重ね合わせ状態

である共振器ポラリトンに着目して多彩な研究が行われている。例えば、励起子系におけるボーズ・アインシュタイン凝縮 (BEC) は長らく実証出来ていなかったが、共振器ポラリトン状態にすることによって高温で BEC の状態になり得る事が実験的に解ってきた。他にも、光パラメトリック散乱・増幅など様々な現象が示されてきているが、これらの研究には、共振器ポラリトンの状態を制御し、巧みに利用する事が重要な鍵となっている。

一方で近年、ワイドギャップ半導体 (GaN, ZnO, CuCl 等) を用いた微小共振器 (WGS MC と略す) の研究が始まり、共振器ポラリトン状態の実現が報告されている。これらの半導体は、GaAs 系と比べて振動子強度が非常に大きく、相互作用の強さを表す Rabi 分裂の大きさも従来の値と比べて一桁以上大きくなることが解ってきた。このような性質から、これまでに無い新しい光学応答や光機能が期待できる。しかし、これらの試料では、共振器の光学活性層である半導体の部分は、量子井戸より大きな、数十 nm のサイズとなる。このようなサイズでは、光学応答を長波長近似で考えるのは妥当ではなく、光場と励起子の波動関数の空間構造を考慮した、微視的非局所応答理論で光学応答を考慮せねばならない。しかしながら現在までに、WGS MC でこのような観点に着目した共振器ポラリトンの研究はほとんどされていない。WGS MC における新奇な光学応答を探求するには、共振器ポラリトンの状態制御が不可欠であり、上述の点を考慮した実験的研究と理論解析が待たれる状況であると考えられる。

## 2. 研究の目的

以上の背景を鑑み、本研究では微視的非局所応答理論を考慮した WGS MC における共振器ポラリトンの精密な状態制御を目指した。具体的には、以下の点について研究を行った。

(1) 共振器ポラリトンで一番重要なパラメータが Rabi 分裂の値である。これまでに、共振器における光場の空間モードを制御することが、Rabi 分裂の制御に対して非常に重要である事が解ってきた。しかし、現在までに得られた結果はまだ定性的なものであり、定量的、統一的な議論が出来ていない。本研究では、実際に作製した試料の測定と非局所応答理論を用いた理論的解析の両方のアプローチによって、Rabi 分裂の精密制御を目指した。

(2) 共振器ポラリトンは、反射率や透過率などの角度依存性の測定によってその状態を調べることが出来る。我々はこれまで、マクロな測定系で実験を行ってきたが、そのよ

うな測定法は十分ではない。そこで、今回新たに顕微分光系を立ち上げた。これにより、マクロな測定では平均化されて現れなかった、試料のミクロな領域における共振器ポラリトンの様子を明らかにできる。

(3) 共振器ポラリトンの複数のモード (例えば上枝・下枝ポラリトン) を同時に光励起すると、そのモード間の量子干渉である Rabi 振動が現れることが知られている。しかし現在まで、WGS MC における Rabi 振動の観測例はない。本研究では、フェムト秒超短パルスレーザーを用いた Pump&Probe 法などから Rabi 振動を観測し、これまで明らかにされていない共振器ポラリトン状態の時間的変化を詳細に調べた。

## 3. 研究の方法

目標に向けて、具体的に以下に示す3つの観点を中心に研究を進めた。

(1) 試料の設計と作製：本研究の実現には試料の設計が非常に重要であるため、これまでの研究結果[Ref. 1]を参考にしつつ、試料構造を新たに検討し直す必要があると考えた。試料の作製は、様々な物質を比較的容易に成膜できることから、真空蒸着法で全てを行い、この方法で成膜できる材料を選定して用いた。

まずこれまでの実績から、光学活性層には CuCl を採用した。CuCl は励起子の準位構造が単純であり、また振動子強度が非常に大きい物質である。そのため、理論的見地からも、実験的な条件からも本研究には最適である。共振器の反射鏡は、金属薄膜と分布型ブラッグ反射鏡 (DBR) の二種類を採用した。特に DBR には、高屈折率媒質として鉛ハライド系 (PbBr<sub>2</sub>, PbCl<sub>2</sub>, PbF<sub>2</sub>)、低屈折率媒質として NaF, LiF, MgF<sub>2</sub> 等を用いた。

(2) 試料の評価と理論解析：作製した試料における共振器ポラリトン状態について精密で的確な評価を行うためには、まず試料に用いた各媒質の複素誘電率とその空間構造の正確な見積が大変重要である。なぜなら、DBR に用いる物質のわずかな光吸収や、各層間における界面状態の僅かな差違によって、ポラリトンの状態が大きく変化するためである。このことは、我々の最近の研究で明らかになってきた。従って、各層の光学定数を正確に見積もる必要があり、これは分光エリプソメトリーを用いて測定した。また、得られた基礎的なパラメータを用いて、理論計算を行った。「研究の目的」においても述べたが、本研究では光場と励起子波動関数の空間構造を考慮した微視的非局所応答理論の枠組みで計算をすることが非常に重要である。これまでも我々は、そのような計算を行っているが、本研究ではさらに現実の試料状態に即した正確な誘電率や空間構造、電子状

態を考慮した上で、より精密な計算を行った。また、共振器ポラリトンの状態を精度良く見積もることが可能となり、実験結果を正確に説明できるようになれば、新しい光学応答に適した試料を設計することが可能となる。

(3) 共振器ポラリトンの実空間、時間領域の精密測定：作製した試料における共振器ポラリトンの詳細を明らかにするために、本研究では新たに顕微分光測定系を構築した。これまでの研究では、マクロな測定系で実験を行ってきたが、作製した試料にはマイクロな領域で場所依存性が存在し、誘電率などの光学的性質も変化することが考えられる。従って、顕微分光測定により、これまでのマクロな測定では平均化されて現れなかった、試料のマイクロな領域における共振器ポラリトンの様子を明らかにした。

これら新しく構築した測定系により精密測定を行った後に、フェムト秒超短パルス光 (Ti:S レーザーの第二高調波) を用いた、Pump&Probe の測定系を構築した。共振器ポラリトンの2又は3モードを同時に励起する事で現れる量子干渉 (Rabi 振動) の観測を行った。

[Ref. 1] Goro Oohata *et al.*, Phys. Rev. B **78**, pp233304/1-4 (2008)

#### 4. 研究成果

(1) まず、試料の設計・作製とそれともなう実験の評価、理論的解析を行った。試料に対する分光エリプソメトリーの結果から、共振器を構成する各層間の界面について中間的な屈折率を有する層がそれぞれ存在することが明らかとなった。これにより、共振器の Q 値やポラリトンの Rabi 分裂エネルギー

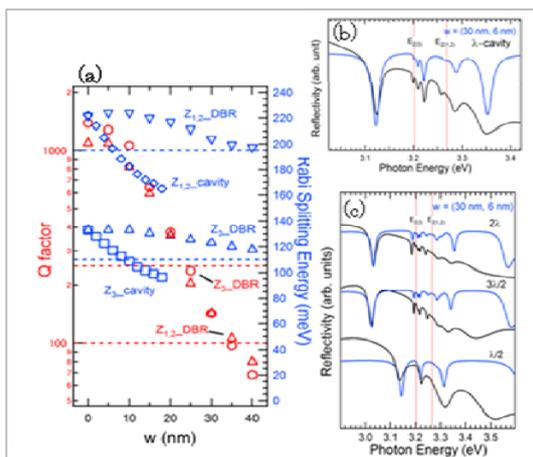


図 1 : (a) 計算によって求められた、共振器における各層間の界面揺らぎの大きさ  $w$  と Q 値, Rabi 分裂エネルギーの値の関係. (b)  $\lambda$  共振器 (共振器長が励起子の 1 波長に対応) における共振器ポラリトンの反射スペクトル, 実験 (黒) と理論計算 (青) (c) 同じく,  $2\lambda$ ,  $3\lambda/2$ ,  $\lambda/2$  共振器についての反射スペクトルの比較

一の値を大きく左右することが考えられ、これまでの理論的な計算と実験の不一致の原因であることが考えられる。このことを明らかにするために、各層に界面揺らぎを導入して非局所応答理論を取り入れた計算を行った。界面揺らぎについては、屈折率の空間分布において正規分布によるたたみ込み積分を行う事により導入した。得られた計算結果を図 1 に示す。このことから、Q 値と Rabi 分裂エネルギーは、層間の界面揺らぎに大きく依存することが判明した。また、実験で得られた共振器ポラリトンのスペクトルについて、理論計算で精密に再現することが可能となった。このことから、作製した試料における共振器ポラリトンの光学応答の特性を正確に理解することが出来たと言える。特に、ワイドギャップ半導体を用いた微小共振器における、共振器ポラリトンの状態について、共振器の光学的な空間構造と Rabi 分裂エネルギーの値や共振器の Q 値などのパラメータとの相関を調べた例は今までない。従って今回得られた結果は、今後の半導体微小共振器を用いたあらゆる基礎・応用研究に対して一つの指標となる重要な結果であると考えられる。

(2) 顕微分光の測定系を新たに構築し、微小領域 ( $\sim 1\mu\text{m}$ ) における共振器ポラリトンの状態について観測を行った。その結果、 $1\mu\text{m}$  程度の領域において共振器の Q 値と共鳴エネルギー、また Rabi 分裂エネルギーについても、無視できない場所依存性が存在することが明らかになった。図 2 に結果の一例を示す。これは試料における各界面のラフネスなどが影響していることが考えられる。この結果から、通常測定するマクロな共振器ポラリトンの応答は、これらのマイクロな領域におけるポラリトン状態のアンサンブルとして考える必要があることが判明した。

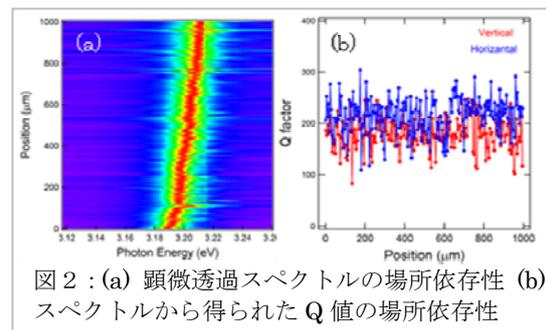


図 2 : (a) 顕微透過スペクトルの場所依存性 (b) スペクトルから得られた Q 値の場所依存性

(3) フェムト秒パルスを用いた透過型のポンプ・プローブ分光法を用いて、共振器ポラリトンの超高速ダイナミクスの測定を行った。CuCl 微小共振器における共振器ポラリトンの時間応答は、共振器光一励起子の結合状態によって大きく変化することが判明した (図 3 を参照のこと)。しかしながら、結合状態

については、関連するパラメータが多いため完全な理解には至っておらず、さらなる詳細研究が必要であると考えられる。

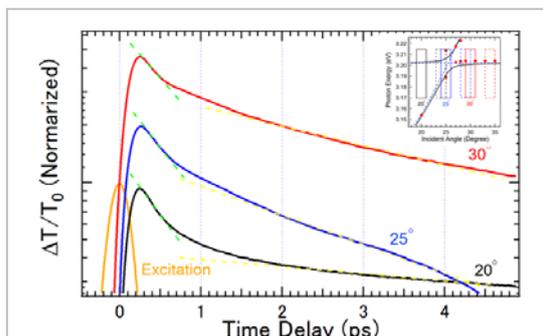


図 3 :  $\lambda/16$  共振器における透過型 Pump&Probe 分光測定の結果.  $20^\circ$  (黒),  $25^\circ$  (青),  $30^\circ$  (赤) における測定結果を示す. 挿入図は、測定を行った共振器ポラリトンの分散関係と励起エネルギーの対応関係を示す.

(4) 2つの単一共振器をつなげて光のトンネリングを可能とした、結合微小共振器の作製に成功した. これにより、共振器に閉じ込める光のモードを様々に変化させる事が可能になり、共振器ポラリトンの状態制御の自由度を格段に広げることが可能となった.

以上、本研究で CuCl 微小共振器における共振器ポラリトンの詳細な状態測定を行い、その詳細を明らかにした. 今後これらの結果を利用して、共振器ポラリトンの様々な発展研究が期待されると考えられる.

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

[1] S. Yoshino, G. Oohata<sup>\*</sup>, Y. Shim, H. Ishihara, K. Mizoguchi, “Rabi splitting in CuCl microcavity with DBR consisting of PbCl<sub>2</sub>/NaF multilayers”, *Physica Status Solidi (c)*, 査読有, Vol. 8, 2011, 221–224

[2] Ryosuke Morishita, Goro Oohata, Kohji Mizoguchi, “Anomalous detection-energy dependence of coherent phonon in bismuth thin films”, *Physica Status Solidi (c)*, 査読有, Vol. 8, 2011, 169-172

[学会発表] (計 2 3 件)

[1] 吉野慎吾、大島悟郎、沈用球、石原一、溝口幸司、「Rabi 分裂エネルギーを抑制した CuCl 微小共振器における共振器ポラリトンの光学特性と時間応答」、日本物理学会 第 67 回年次大会、2012 年 3 月 24 日、関西学院大

学西宮キャンパス

[2] 吉野慎吾、大島悟郎、久津輪武史、沈用球、石原一、溝口幸司、「CuCl 微小共振器における面内方向膜厚揺らぎの解析」、第 22 回光物性研究会、2011 年 12 月 10 日、熊本大学工学部百周年会館

[3] S. Yoshino, G. Oohata, Y. Shim, H. Ishihara, and K. Mizoguchi, “Characteristics of Cavity Polaritons in CuCl Microcavities”, The 11th Tamura Memorial Symposium, 2011 年 12 月 3 日、大阪府立大学サイエンスホール

[4] 吉野慎吾、大島悟郎、久津輪武史、沈用球、石原一、溝口幸司、「CuCl 微小共振器における面内不均一性の効果」、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学五福キャンパス

[5] 大島悟郎、「半導体微小共振器における共振器ポラリトンの光物性」、第 1 回光科学異分野横断萌芽研究会、2011 年 8 月 10 日、かんぼの宿 奈良

[6] 吉野慎吾、大島悟郎、沈用球、石原一、溝口幸司、「屈折率の空間構造を考慮した CuCl 微小共振器における光学応答の解析」、日本物理学会 第 66 回年次大会、2011 年 3 月 26 日、新潟大学

[7] S. Yoshino, G. Oohata<sup>\*</sup>, Y. Shim, H. Ishihara, K. Mizoguchi, “Rabi splitting in CuCl microcavity with DBR consisting of PbCl<sub>2</sub>/NaF Multilayers”, 9th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'10) 2010 年 7 月 13 日、オーストラリア、ブリスベン

その他、16 件.

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

大島 悟郎 (OOHATA GORO)

大阪府立大学・理学系研究科・助教

研究者番号：10464653