

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340087

研究課題名(和文)テラヘルツ領域変調分光法によるコヒーレント波束ダイナミクスの研究

研究課題名(英文)Study of coherent wave-packet dynamics using THz-domain modulation spectroscopy

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) 15,800,000円、(間接経費) 4,740,000円

研究成果の概要(和文)：半導体ナノ構造薄膜に生成されるコヒーレント波束のダイナミクスを明らかにすることを目的に、テラヘルツ領域変調分光法を用いて、半導体微小共振器中のポラリトン間の量子干渉であるラビ振動とコヒーレントフォノンについて研究を行った。その結果、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がポラリトンの励起子成分とコヒーレントフォノンとの分極相互作用を通じて結合し、ラビ振動が駆動力となってコヒーレントフォノンが著しく増強されることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have investigated coherent phonons and Rabi oscillations resulting from quantum interference between two polariton states in semiconductor microcavities by using THz-domain modulation spectroscopy and pump-probe method, to clarify the dynamics of coherent wave packets generated in semiconductor nano-structure films. We demonstrate that short-lived Rabi oscillations and long-lived coherent phonons are coupled to each other through the polarization interaction between the excitonic components of polaritons and coherent phonon, and the coherent phonons are extremely enhanced by Rabi oscillations.

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：半導体微小共振器 ラビ振動 光励起キャリア コヒーレントフォノン

1. 研究開始当初の背景

THz 波の研究は世界的に盛んに行われており、分光やイメージングなどに応用されている。近年、THz 波技術の新展開のために、より高強度の THz 波発生が期待されている。その一手法として、非線形光学結晶に高強度パルスレーザーを照射することによる、高強度 THz パルスの発生が報告され^{1, 2)}、この高強度 THz 光源は分光やイメージングなどのセンシングに用いられている。一方、情報通信における THz 光源の必要性から、室温で発振可能で単一の振動数を有する「新規な THz レーザーの実現」が期待されている。

そこで、我々は、量子カスケードレーザーでは発振できない振動数領域の THz 光源として、多重量子井戸構造中のコヒーレント L0 フォノンに着目し、コヒーレント L0 フォノンからの THz 波について研究を行ってきた。この多重量子井戸構造において、井戸層幅を変えることや電場を印加することで、サブバンド間エネルギー差を L0 フォノンのエネルギーに近づけると、コヒーレント L0 フォノンからの THz 波が著しく増強されることを報告している。特に、電場を印加することでコヒーレント L0 フォノンからの THz 波を増強させた時、その THz 波の緩和速度が著しく変化していることを見出しており、この結果は「コヒーレントフォノンの誘導放出」の可能性を示唆しているものと考えている。最近、音響フォノンによるフォノンレーザーに関する報告がなされており、同様に、光学フォノンを利用したコヒーレントフォノンレーザーの実現が期待されている。

THz 波発生観点で励起子の準位間遷移に着目すると、励起子の準位間遷移に非線形性や誘導放出の可能性が見られることから、「励起子 THz レーザー」という新たな方向性が予想できる。そのためには、半導体ナノ構造薄膜における「コヒーレント状態の励起子の生成・緩和ダイナミクス」や「励起子準位間遷移による誘導放出のダイナミクス」を明らかにする必要があると考え、本研究の申請に至った。その準備段階として、銅ハライド薄膜を活性層に用いた微小共振器中のキャビティポラリトン（共振器ポラリトン）について研究を進めている。

このような背景の中、我々は、コヒーレントフォノン、量子振動であるラビ振動や量子ビートなどのコヒーレント波束の生成・緩和ダイナミクス、および、それぞれのコヒーレント波束間の結合ダイナミクスを明らかにすることを目的に、本研究を進めるに至った。

2. 研究の目的

本研究では、THz 領域分光の観点から、半導体ナノ構造薄膜におけるコヒーレント波束の生成・緩和ダイナミクス、および、コヒーレント波束間の結合ダイナミクスを明らかにし、THz 領域における誘導放出の可能性を見出すことを大きな目標としている。この

目標のため、THz 波放射、反射（吸収）および変調分光が同時に測定できる THz 領域変調分光装置を開発し、この THz 領域変調分光装置およびポンプ・プローブ分光装置を用いて、半導体ナノ構造薄膜である半導体微小共振器を主対象として、光励起キャリア、コヒーレントフォノンやラビ振動などのコヒーレント波束のダイナミクスを明らかにすることを目的に研究を行った。

3. 研究の方法

本研究では、半導体微小共振器における、コヒーレント波束の生成・緩和ダイナミクスを明らかにするため、下記の研究を行った。

(1) THz 放射、THz 反射（吸収）および THz 領域の変調分光が同時に測定できる THz 領域変調分光装置を開発する。また、この THz 領域変調分光装置を用い、コヒーレントフォノンや光励起キャリアなどのコヒーレント波束について生成・緩和ダイナミクスを明らかにする。

(2) 微小共振器構造を有する銅ハライド・ナノ構造薄膜において、キャビティポラリトンのコヒーレント波束について生成・緩和ダイナミクスを明らかにする。

(3) THz 領域変調分光装置およびポンプ・プローブ分光装置を用いて、励起子、キャビティポラリトンやコヒーレントフォノンなどにおける準位間遷移による誘導放出の可能性について検討を行う。

4. 研究成果

(1) THz 領域変調分光装置の開発、および、CdTe 半導体中のコヒーレント波束ダイナミクスの研究

半導体ナノ薄膜におけるコヒーレント波束の生成・緩和ダイナミクスを明らかにする方法の一つとして、図 1 に示す THz 領域変調分光装置を開発した。本装置は、半導体試料からの THz 波放射の観測ができ、THz 領域の反射特性を測定できる装置である。さらに、本装置の特徴は、光励起したキャリアの緩和ダイナミクスに関するキャリア密度の減衰

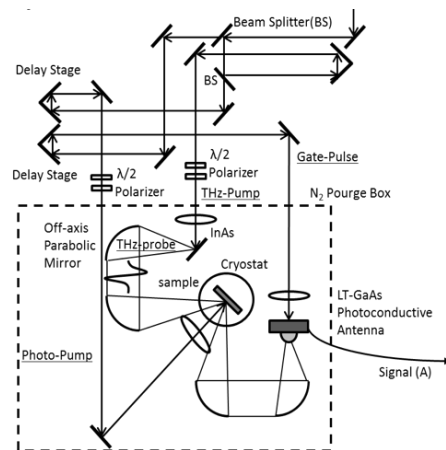


図 1. THz 領域変調分光装置の概略図

の様子を THz 領域で観測できることにある。

この装置を用いて、CdTe 半導体からの THz 波放射および CdTe 半導体における THz 波の反射スペクトルを観測した (図 2)。CdTe 半導体から放射されている THz 波は、CdTe 表面付近の表面電場中を移動する光励起キャリアの過渡電流によって生じたものと考えられる。この THz 波放射スペクトルの半値幅から、過渡電流の緩和速度は約 1 ps^{-1} と見積も

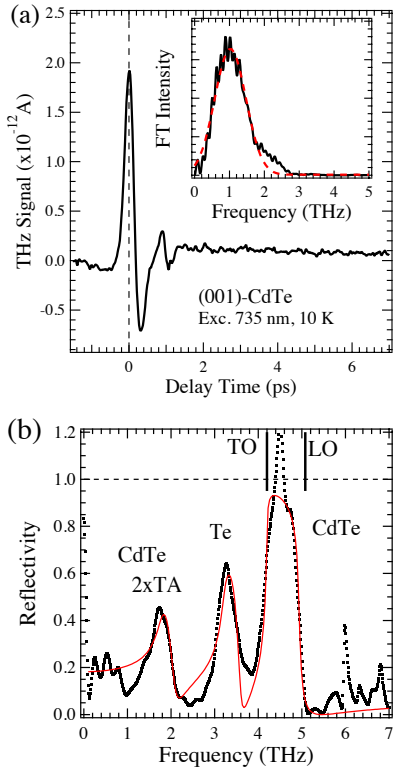


図 2. (a) CdTe 半導体からの THz 放射の時間領域スペクトルとそのフーリエ変換スペクトル (挿入図)。 (b) CdTe 半導体における THz 領域反射スペクトル。赤色の曲線はフィッティング結果。

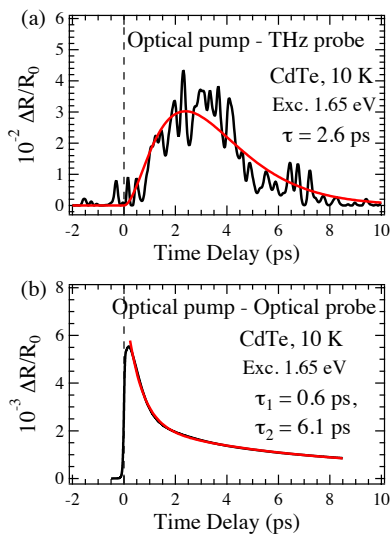


図 3. 光ポンプ-THz プロブ法によってえられた時間分解反射率変化 (a) と光ポンプ-光プロブ法によってえられた時間分解反射率変化 (b)。赤色の曲線はフィッティング結果。

られる。また、CdTe 半導体における THz 波の反射スペクトルにおいては、Te のフォノンによる反射モードが観測され、本測定で用いた CdTe 半導体においては、表面近傍に Te が析出していることがわかった。

この CdTe 半導体中の光励起キャリアの緩和ダイナミクスを明らかにするため、THz 領域変調反射分光法 (いわゆる、光ポンプ-THz プロブ法) を用いて、光励起の有無の違いによる THz 波の時間分解反射率変化を調べた。図 3 は、光励起キャリアによる THz 領域の反射率変化、および、通常の光ポンプ-光プロブ法によって得られた時間分解反射率変化を示す。THz 領域の時間分解反射率変化と、光領域の時間分解反射率変化のプロファイルが明らかに違っていることがわかる。そこで、それぞれの領域で観測された反射率変化の緩和時間および立ち上がり時間を見積もった。その結果、THz 領域プロブでは、立ち上がり時間が約 2 ps であり、緩和時間は約 2.6 ps と見積もられた。また、光領域では、2 つの緩和時間が見積もられ、それぞれ約 0.6 ps と約 6.1 ps とわかった。両領域で観測された緩和時間の違いは、見ている物理現象の違いを反映しているものと考えられる。光領域での観測では、光励起されたキャリアが伝導帯内を緩和することによって生じる電子遷移に関する複素感受率の時間変化を表していると考えられる。一方、THz 領域においては、光励起キャリアが電子-正孔対から電子-正孔プラズマ状態を形成し、そのプラズマ状態のキャリア密度の時間変化を観測していると考えられる。すなわち、THz 領域プロブに観測される反射率変化は、キャリア密度の時間変化を通して、電子-正孔プラズマの生成-緩和過程を直接表していると思われる。

(2) CuCl 半導体微小共振器におけるコヒーレント波束のダイナミクスに関する研究

CuCl 半導体微小共振器におけるラビ振動やコヒーレントフォノンなどのコヒーレント波束のダイナミクスを明らかにするために、まず、CuCl 半導体微小共振器の作製およびその光学特性について研究を行った。

半導体微小共振器に観測されるラビ振動は二つの共振器ポラリトン間のエネルギー差に対応する振動数で振動する。そのため、強結合によりモード分裂した共振器ポラリトン間の反交差の度合いを表すラビ分裂エネルギーを制御することが、ラビ振動を観測するうえで重要となる。そこで、本研究では、大きな振動子強度を有する CuCl 半導体を微小共振器の活性層に使い、半導体微小共振器に観測されるラビ分裂エネルギーの制御と共振器ポラリトンの光学特性について調べた。その結果、ラビ分裂エネルギーは、活性層厚を変化させることで、CuCl 中の Z_3 励起子に対するラビ分裂エネルギーを約 10–140 meV の広い範囲で制御することに成功した

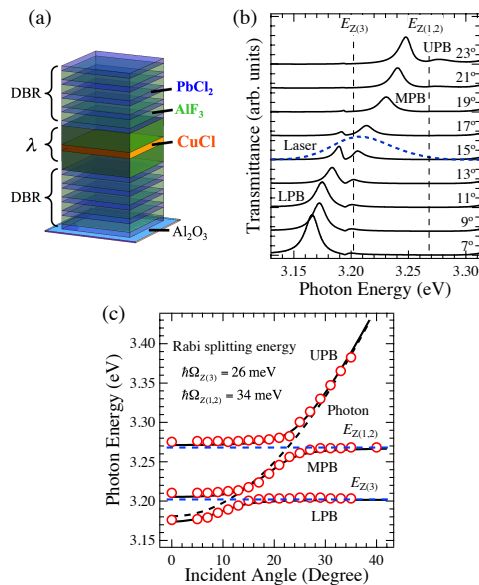


図 4. 測定に用いた半導体微小共振器（共振器層厚： λ 、活性層厚： $\lambda/4$ ）の構造図(a)、角度分解透過率スペクトル(b)と、角度分解透過率スペクトルから得られた各共振器ポラリトンモードのピークエネルギーの入射角度依存性(c)。図 4(c)中の黒色の曲線は、共振器ポラリトンモードの入射角依存性に、現象論的ハミルトニアンを用いてフィッティングした結果。フィッティングより得られた Z_3 励起子および励起子に対するラビ分裂エネルギーは、それぞれ、26 meV および 34 meV である。

次に、上記の CuCl 微小共振器における、ラビ振動およびコヒーレントフォノンのダイナミクスを明らかにすることを目的に、通常のポンプ・プローブ法を用いて、時間分解透過率変化の測定を行った。測定に用いた CuCl 微小共振器の試料は、共振器層厚が λ で、活性層厚が $\lambda/8$ の試料である(図 4)。ここで、 $\lambda = \lambda_{\text{ex}}/n$ であり、 λ_{ex} は、 Z_3 励起子の共鳴波長であり、 n は背景屈折率である。この試料における角度分解透過率変化の測定結果、および、角度分解透過率変化から得られた共振器ポラリトンの分散関係を図 4 に示す。共振器ポラリトンの分散関係から、3 つのポラリトン分枝 (Lower Polariton Branch: LPB, Middle Polariton Branch: MPB, Upper Polariton Branch: UPB) が観測され、それぞれのポラリトン分枝は光の入射角度とともに、そのピークエネルギーが変化していることがわかる。特に、約 12 度付近で、LPB と MPB とのエネルギー差が最も小さく、このエネルギー差 (19 meV: 4.7 THz) は、CuCl のコヒーレントフォノンのエネルギー (26 meV: 6.3 THz) より小さいことがわかる。

作製した CuCl 微小共振器において、透過型ポンプ・プローブ法 (透過型 Electro-Optic Sampling 法) を用い、ポンプ光の入射角度を変えて時間分解透過率変化を測定した。測定に用いたポンプ光のエネルギーは、共振器ポラリトンの LPB および MPB の中心エネルギー

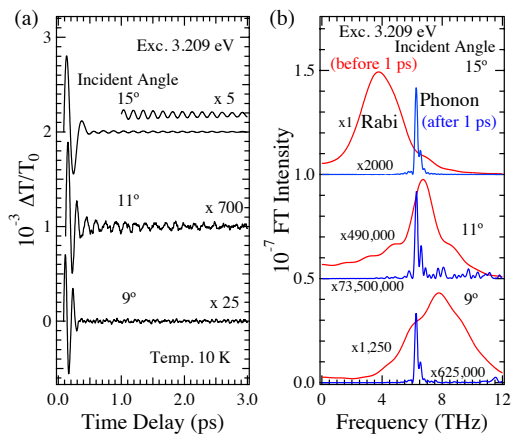


図 5. 透過型 Electro-optic sampling 法を用いた CuCl 微小共振器 (共振器層厚： λ 、活性層厚： $\lambda/4$) における時間分解透過率変化とフーリエ変換スペクトル。(a) 各入射角における時間分解透過率変化。(b) 時間分解透過率変化のフーリエ変換スペクトル。赤色の曲線は 1ps 以前の遅延時間領域におけるフーリエ変換スペクトルであり、青色の曲線は 1ps 以降の遅延時間領域におけるフーリエ変換スペクトルである。

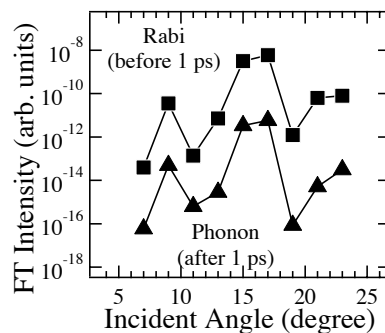


図 6. ラビ振動強度の入射角依存性と、コヒーレントフォノン強度の入射角依存性。

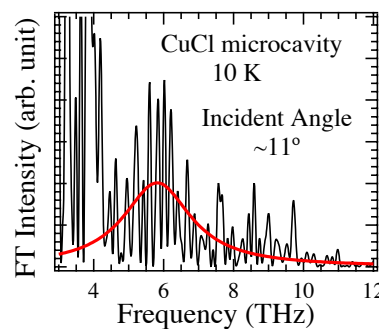


図 7. CuCl 微小共振器 (共振器層厚： λ 、活性層厚： $\lambda/4$) からの THz 電磁波放射スペクトル。

にあわせた。得られた CuCl 微小共振器の時間分解透過率変化の振動成分を図 5(a) に示す。約 0.5 ps までの遅延時間領域に、振幅の大きい振動が観測されており、この振動は入射角とともに、振動周期が変化している。さらに、約 1.0 ps 以降に非常に弱い振動が観測されている。この弱い振動は、強い振動の振

幅に連動して、その振幅が変化しているが、その振動周期は、入射角度に依存していないことがわかる。これらの2つの振動成分の起源を明らかにするために、時間領域信号を1ps以前と1ps以降の遅延時間領域に分け、それぞれの時間領域信号をフーリエ変換した(図5(b))。1ps以前の時間領域振動のフーリエ変換スペクトル(赤色の曲線)は、入射角とともにピーク振動数が変化しており、1ps以降の時間領域振動のフーリエ変換スペクトル(青色の曲線)のピーク振動数は、入射角に依存せず一定の振動数を示している。これらの振動数を、それぞれの入射角度における共振器ポラリトンのLPBとMPBのエネルギー差、および、CuClの縦光学(L0)フォノンの振動数と比較することで、1ps以前に観測される強い振動はラビ振動によるものであり、1ps以降に観測される弱い振動はコヒーレントL0フォノンによるものであることがわかる。

CuCl微小共振器に観測されたラビ振動とコヒーレントL0フォノンとの関係を明らかにするため、ラビ振動のピーク強度とコヒーレントフォノンのピーク強度を入射角度に対してプロットした(図6)。図から明らかなように、ラビ振動のピーク強度の入射角依存性と、コヒーレントフォノンのピーク強度の入射角依存性が同様のプロファイルを示している。これは、ラビ振動が駆動力となってコヒーレントフォノンを振動させていることを示している。すなわち、ラビ振動とコヒーレントフォノンが分極相互作用を通じて結合し、その結果、コヒーレントフォノンがラビ振動によって増強されていることを意味している。この結果は、本研究で始めて得られた研究成果である。

(3) CuCl微小共振器における準位間遷移による誘導放出の可能性についての検討

上に示したように、ポンプ・プローブ法を用いることで、CuCl微小共振器において、共振器ポラリトンの準位間遷移(LP-B-UPB間遷移)によるラビ振動が観測された。そこで、本研究では、ラビ振動によるTHz電磁波放射を観測し、そのTHz電磁波の誘導放出の可能性について検討した。図7は、ポンプ・プローブ測定で行ったCuCl微小共振器の試料を用いて得られた、時間分解THz電磁波放射信号をフーリエ変換したスペクトルである。フーリエ変換スペクトルから、CuCl微小共振器中のラビ振動から放射されるTHz電磁波は非常に弱いことがわかる。このことから、CuCl微小共振器中のラビ振動によるTHz電磁波では、現在のところTHz電磁波の誘導放出の可能性は小さいと考えられる。準位間遷移によるTHz電磁波の誘導放出を確認するためには、ラビ振動からのTHz電磁波の増強手法や微小共振器の試料構造を検討する必要があると考えている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計8件)

- ① S. Yoshino, G. Oohata, Y. Shim, H. Ishihara, and K. Mizoguchi, "Optical properties of CuCl microcavities with fluctuations in their refractive index profiles along the cavity structures", Phys. Rev. B **88**, 205311 (2013). (査読有)
- ② T. Okude, G. Oohata, S. Yoshino, Y. Shim, H. Ishihara, and K. Mizoguchi, "Optical properties of asymmetric coupled CuCl microcavities", Eur. Phys. J. B **86**, 143 (2013). (査読有)
- ③ Y. Yamamoto, G. Oohata, H. Ichida, Y. Kanematsu, K. Mizoguchi, "Photoluminescence of Excitons and Biexcitons in $(\text{C}_4\text{H}_9\text{NH}_3)_2\text{PbBr}_4$ Crystals under High Excitation Density", physica status solidi (c) **9**, pp.2501-2504 (2012). (査読有)
- ④ O. Kojima, K. Mizoguchi, and M. Nakayama, "Quantum beats of type-I and type-II excitons in an $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ strained single quantum well", J. Appl. Phys. **112**, 043522 (2012). (査読有)
- ⑤ S. Yoshino, G. Oohata, Y. Shim, H. Ishihara, and K. Mizoguchi, "Rabi splitting in CuCl microcavity with DBR consisting of PbCl_2/NaF multilayers", phys. status solidi (c) **8**, pp.221-224 (2011). (査読有)

[学会発表](計32件)

- ① 吉野慎吾, 大島悟郎, 溝口幸司, 「CuCl微小共振器におけるRabi振動 コヒーレントフォノン間結合の偏光特性」, 日本物理学会第69回年次大会, 28pCK-7, 東海大学(2014年3月28日)(査読無)
- ② 中村健翔, 大島悟郎, 齋藤伸吾, 川上彰, 溝口幸司, 「第2高調波照射によるInAsからのTHz電磁波放射の研究」, 第24回光物性研究会, I B-35, 大阪市立大学, (2013年12月13日)(査読無)
- ③ 吉野慎吾, 大島悟郎, 溝口幸司, 「CuCl微小共振器におけるRabi振動 コヒーレントフォノン間結合の偏光依存性」, 第24回光物性研究会, III A-90, 大阪市立大学, (2013年12月14日)(査読無)
- ④ 大島悟郎, 奥出寛也, 吉野慎吾, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「CuCl微小共振器におけるRabi分裂エネルギーの反交差角依存性」, 日本物理学会 秋季大会, 26pPSA-19, 徳島大学, (2013年9月26日)(査読無)
- ⑤ 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「共振器ポラリトン間の量子ビートによるコヒーレントL0フォノンの増強効果II」, 日本物理学会 秋季大会, 27aDB-9, 徳島大学, (2013年9月27日)(査読無)

- ⑥ Shingo Yoshino, Goro Oohata, Yong-Gu Shim, Hajime Ishihara, Kohji Mizoguchi, “Generation of Coherent Phonon by Rabi Oscillation in CuCl Microcavity”, Nonlinear Optics (NLO) 2013, NTu3A.3, The Fairmont Orchid, Kohala Coast, Hawaii, USA, (2013年7月23日). (査読有)
- ⑦ 奥出寛也, 大島悟郎, 吉野慎吾, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「CuCl を用いた非対称結合微小共振器における共振器ポラリトンの状態制御」, 日本物理学会 第68回年次大会, 28pEH-2, 広島大学, (2013年3月28日) (査読無)
- ⑧ 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「共振器ポラリトン間の量子ビートによるコヒーレント LO フォノンの増強効果」, 日本物理学会 第68回年次大会, 29aEH-3, 広島大学, (2013年3月29日) (査読無)
- ⑨ 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「CuCl 微小共振器における超高速応答の研究」, 第23回光物性研究会, IIIB-96, 大阪市立大学, (2012年12月8日) (査読無)
- ⑩ 奥出寛也, 大島悟郎, 吉野慎吾, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「CuCl を用いた非対称結合微小共振器における共振器ポラリトンの観測」, 日本物理学会 2012年秋季大会, 18aPSB-2, 横浜国立大学, (2012年9月18日) (査読無)
- ⑪ 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「CuCl 微小共振器における励起子-光子結合状態の超高速ダイナミクス」, 日本物理学会 2012年秋季大会, 18aPSB-5, 横浜国立大学, (2012年9月18日) (査読無)
- ⑫ 吉野慎吾, 大島悟郎, 沈用球, 石原一, 溝口幸司, 「CuCl 微小共振器における励起子-光子結合状態間のビートの観測」, 第73回応用物理学会学術講演会, 13a-B2-1, 愛媛大学・松山大学, (2012年9月13日) (査読無)
- ⑬ T. Okude, G. Oohata, S. Yoshino, Y. Shim, H. Ishihara, K. Mizoguchi, “Optical properties of asymmetric coupled CuCl microcavities”, EXCON2012 (the 10th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Nanostructured and Molecular Materials), P085, Groningen, The Netherlands, (2012年7月5日). (査読有)
- ⑭ 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, 24pPSA-55, 関西学院大学, (2012年3月24日) (査読無)
- ⑮ 山下真弘, 河相武利, 大島悟郎, 溝口幸司, 「セル法で作製したアントラセン薄

膜結晶の発光ダイナミクス」, 日本物理学会 第67回年次大会, 24pPSA-59, 関西学院大学, (2012年3月24日) (査読無)

- ⑯ 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, IIIA-84, 熊本大学, (2011年12月10日) (査読無)
- ⑰ 山下真弘, 河相武利, 溝口幸司, 「ナノスケールサイズのアントラセン結晶の自由励起子発光」, 第22回光物性研究会, IA-17, 熊本大学, (2011年12月9日) (査読無)
- ⑱ 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, 21pPSA-33, 富山大学, (2011年9月21日) (査読無)
- ⑲ 山下真弘, 河相武利, 溝口幸司, 「ナノスケールサイズの芳香族分子結晶の発光特性」, 日本物理学会 2011年秋季大会, 21pPSB-20, 富山大学, (2011年9月21日) (査読無)

[図書] (計 0件)

無し

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

無し

○取得状況 (計 0件)

無し

[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) 研究代表者

溝口 幸司 (MIZOGUCHI, Kohji)

大阪府立大学・大学院理学系研究科・教授
研究者番号：10202342

(2) 研究分担者

河相 武利 (KAWAI, Taketoshi)

大阪府立大学・大学院理学系研究科・准教授
研究者番号：00214586

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

(3) 連携研究者

無し