

CuBr マイクロキャビティの作製とその光学特性

金谷侑佳、川瀬稔貴、金大貴、中山正昭

大阪市立大学大学院 工学研究科 電子情報系専攻

Preparation of a CuBr microcavity and their optical properties

Y. Kanatani, T. Kawase, D. Kim, and M. Nakayama

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Osaka City University

We have investigated exciton-photon coupling phenomena in a CuBr microcavity with distributed Bragg reflectors (DBRs) consisting of HfO_2 and SiO_2 layers. We adopted rf magnetron sputtering and vacuum deposition for the preparation of the DBR and the CuBr active layer, respectively. The angle-resolved reflectance spectra demonstrate the formation of four cavity polariton modes. The experimental results are well explained by the calculated dispersions of the cavity polaritons with a phenomenological Hamiltonian considering the strong coupling between the cavity photon and three kinds of excitons labeled Z_f , $Z_{1,2}$, and Z_3 . The Rabi splitting energies are estimated to be 32, 96, and 71 meV for the Z_f , $Z_{1,2}$, and Z_3 excitons, respectively. These giant Rabi splitting energies reflect the large oscillator strengths of the relevant excitons of CuBr.

1.はじめに

半導体マイクロキャビティでは、励起子と光子の相互作用の制御が可能であり、励起子-光子強結合領域においてキャビティポラリトンが形成される[1]。この状態を利用することで、ボースアインシュタイン凝縮[2]、ポラリトンレーザー発振[3]などへの応用が期待されている。

物性研究、及び、応用の観点において有効な活性層媒質として、励起子-光子相互作用が大きく、キャビティポラリトンが室温まで存在できることが求められる。本研究で注目した CuBr は、高い励起子振動子強度と励起子束縛エネルギーを兼ね備えており、上記の条件を満たしている。さらに CuBr には、最低エネルギー状態に 3 重項励起子に起因した Z_f 励起子が存在する[4]。そのため、CuBr マイクロキャビティでは、 Z_f 、 $Z_{1,2}$ 、 Z_3 励起子と光子の相互作用が生じ、lower polariton branch (LPB)、middle polariton branch 1 (MPB1)、MPB2、upper polariton branch (UPB) と呼ばれる 4 つの分散を持ったキャビティポラリトンが形成される。上

記の観点から、我々は CuBr マイクロキャビティを作製し、そのキャビティポラリトン特性を明らかにすることを目的として研究を行った。

2.試料構造と実験方法

本研究では、上部、下部 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 分布ブラッグ反射鏡(DBR)の間に、活性層として CuBr を配置した DBR 型 CuBr マイクロキャビティを作製した。DBR は HfO_2 層と SiO_2 層を一周期として、下部は 9.5 周期、上部は 8.5 周期積層しており、活性層の設計有効膜厚を $\lambda/2$ とした。DBR の作製には、rf マグネトロンスパッタリング法を用い、作製条件は Ar ガス圧を 1.33 Pa、成長温度を室温とした。CuBr 活性層の作製には、真空蒸着法を用いた。蒸着源には、市販の CuBr 粉末(純度 99.999%)を用い、作製時の真空度は 1.0×10^{-5} Pa、成長温度は 60°C とした。光学特性に関しては、角度分解反射スペクトルの測定を行った。光源には Xe ランプを用い、検出には 32 cm 分光器(スペクトル分解能: 0.15 nm)と冷却 CCD を用いた。

3.結果と考察

図1は、作製した CuBr マイクロキャビティにおける 10K での角度分解反射スペクトルを示している。DBR のストップバンドの内側に、●、▲、■、▼で示した 4 つのディップ構造は顕著な角度依存性を示しており、キャビティポラリトンに起因した信号であることを示唆している。

図2は、図1における4つのディップ構造のエネルギーの入射角度依存性を示している。得られた実験結果に対して、CuBr の Z_f 、 $Z_{1,2}$ 、 Z_3 励起子と光子との相互作用を考慮した(1)式で示す 4×4 行列の現象論的ハミルトニアンを用いて解析を行った。

$$H = \begin{pmatrix} E_{ph}(\theta) & \Omega_f/2 & \Omega_{1,2}/2 & \Omega_3/2 \\ \Omega_f/2 & E_{Z(f)} & 0 & 0 \\ \Omega_{1,2}/2 & 0 & E_{Z(1,2)} & 0 \\ \Omega_3/2 & 0 & 0 & E_{Z(3)} \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで、 $E_{ph}(\theta)$ は励起子-光子相互作用が生じない場合のキャビティ内の光子のエネルギーを表しており、式(2)で表される。

$$E_{ph}(\theta) = E_0 \left(1 - \frac{\sin^2 \theta}{n_{eff}^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2)$$

θ は試料入射角度、 E_0 は $\theta=0^\circ$ における光子のエネルギー、 n_{eff} はキャビティ内の有効屈折率である。また、 $E_{Z(f)}$ 、 $E_{Z(1,2)}$ 、 $E_{Z(3)}$ はそれぞれ Z_f 、 $Z_{1,2}$ 、 Z_3 励起子エネルギーであり、 Ω_f 、 $\Omega_{1,2}$ 、 Ω_3 はそれぞれの励起子のラビ分裂エネルギーを表している。

ここで、フィッティングにおけるラビ分裂エネルギーの任意性を排除するために、それぞれの励起子におけるラビ分裂エネルギーの相対比の見積もりを行う。ラビ分裂エネルギーは励起子振動子強度の $1/2$ 乗に依存することが知られており[5]、それぞれの励起子振動子強度の相対比は吸収積分強度の比から見積もることができる。図3は、 Al_2O_3 基板上に作製した CuBr 薄膜の吸収ス

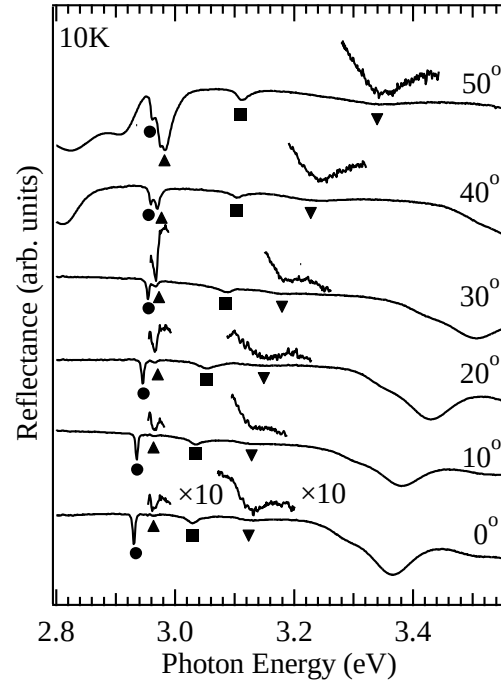


図1 活性層厚 $\lambda/2$ の 10K での CuBr マイクロキャビティにおける角度分解反射スペクトル。

ペクトルを示している。図中の○印で示すスペクトルが実験結果を表しており、灰色で示した部分が全体のフィッティング結果を示し、黒色、白色、斜線で示した部分は、それぞれ Z_f 、 $Z_{1,2}$ 、 Z_3 励起子のフィッティング結果を示している。また、挿入図は、吸収スペクトルにおける 2.94 eV から 3 eV 付近の拡大図を示している。スペクトルフィッティングにより求めた各励起子の積分吸収強度の相対比は 0.11:1:0.55 であり、この値からそれぞれの励起子におけるラビ分裂エネルギーの相対比を 0.33:1:0.74 と見積もった。以上の結果から、現象論的ハミルトニアンにおけるラビ分裂エネルギーの相対比を上記の値で固定し、 E_0 、及び、 $\Omega_{1,2}$ をフィッティングパラメータとして計算を行った。図2の実線は、式(1)により計算したキャビティポラリトン分散を示している。破線は、励起子-光子相互作用がない場合の励起子とキャビティ光子のエネルギーを示している。計算結果は実験結果を良く再

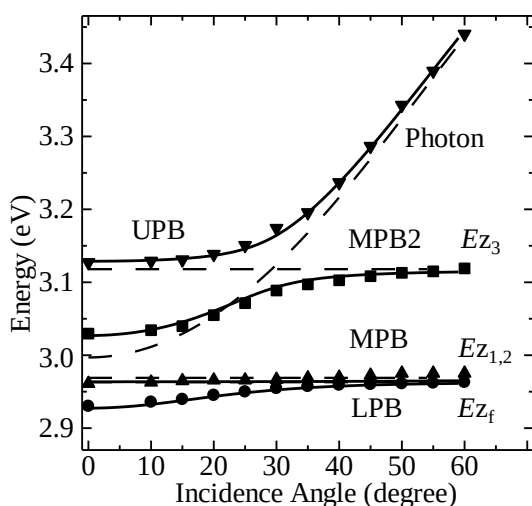


図2 角度分解反射スペクトルにおけるディップ構造の入射角度依存性。実線は式(1)を用いた計算結果、破線は励起子-光子相互作用を考慮しない場合の Z_f 、 $Z_{1,2}$ 、 Z_3 励起子とキャビティ光子のエネルギーを示す。

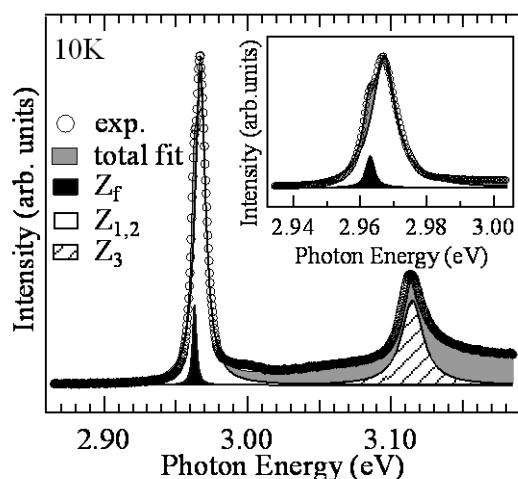


図3 CuBr 薄膜における吸収スペクトル。

現しており、●、▲、■、▼で示すディップ構造がそれぞれ LPB、MPB1、MPB2、UPB に起因した信号であると結論付けられる。また、解析結果から得られたラビ分裂エネルギーは、 Z_f 励起子で 32 meV、 $Z_{1,2}$ 励起子で 96 meV、 Z_3 励起子で 71 meV であった。これまでに報告されている GaAs マイクロキャビティにおけるラビ分裂エネルギーは 3 meV[7]であり、今回得られた $Z_{1,2}$ 励起子におけるラビ分裂エネルギーはその 32 倍もの巨大な値である。上記のように、ラビ分

裂エネルギーは励起子振動子強度の 1/2 乗に比例する。また、励起子振動子強度は、式(3)のように表すことが出来る[8]。

$$f = \epsilon_b (E_L^2 - E_T^2) \quad (3)$$

ϵ_b は背景誘電率、 E_L 、 E_T はそれぞれ横型、縦型励起子エネルギーを示している (GaAs: $\epsilon_b=10.86$ 、 $E_T=1.515$ eV、 $E_L=1.51508$ eV[4]、CuBr ($Z_{1,2}$ 励起子) : $\epsilon_b=5.7$ 、 $E_T=2.9644$ eV、 $E_L=2.9774$ eV [6])。式(3)を用いて計算したそれぞれの励起子振動子強度は $f_{\text{GaAs}}=2.5 \times 10^3 \text{ meV}^2$ 、 $f_{\text{CuBr}}=2.4 \times 10^6 \text{ meV}^2$ であり、ここから CuBr のラビ分裂エネルギーは GaAs に対して 31 倍大になるという結果が得られた。この値は、実験結果から得られたラビ分裂エネルギーの比と良く一致している。この結果は、本研究で得られた巨大ラビ分裂エネルギーが CuBr の高い励起子振動子強度を反映していると言え、ラビ分裂エネルギーは励起子振動子強度によってスケールアップできることを実証している。以上の結果より、CuBr マイクロキャビティの作製、及び、キャビティポラリトンの明確な観測に成功したと結論付けられる。

最後にキャビティポラリトンの室温における安定性を検証するために、室温における角度分解反射スペクトルを測定した。図 4(a)は室温における角度分解反射スペクトルであり、図 4(b)は、角度分解反射スペクトルにおいて得られたディップ構造の入射角度依存性を示している。実線は式(1)の現象論的ハミルトニアンにより計算したキャビティポラリトン分散関係を示しており、実験結果を良く再現している。また、解析結果より得られたラビ分裂エネルギーの値は、 Ω_f が 31 meV、 $\Omega_{1,2}$ が 90 meV、 Ω_3 が 67 meV であった。以上の結果は、室温においても励起子-光子強結合が実現できていることを明確に実証している。

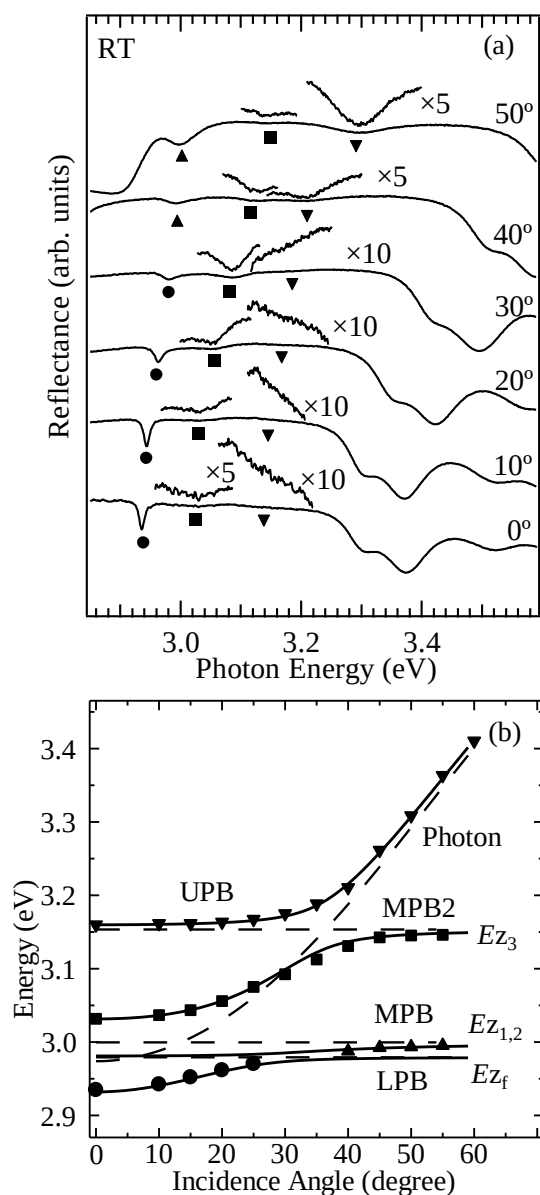


図 4(a) 室温での CuBr マイクロキャビティにおける角度分解反射スペクトル。(b)室温での角度分解反射スペクトルにおけるディップ構造の入射角度依存性。

4.まとめ

本研究では、rf マグネトロンスパッタリング法と真空蒸着法を組み合わせ、 $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ DBR 型 CuBr マイクロキャビティを作製した。作製した試料における 10K での角度分解反射スペクトルから、明確なキャビティポラリトン分散が観測された。得られたキャビティポラリトン分散関係につ

いて、 Z_f , $Z_{1,2}$, Z_3 励起子とキャビティ光子との相互作用を考慮した、 4×4 行列の現象論的ハミルトニアンを用いて解析を行った。その結果、 Z_f , $Z_{1,2}$, Z_3 励起子のラビ分裂エネルギーをそれぞれ 32、96、71 meV と見積もり、CuBr の高い励起子振動子強度を反映した巨大なラビ分裂エネルギーを実現した。更に、室温における角度分解反射スペクトルにおいてキャビティポラリトンに起因したディップ構造を明確に観測し、CuBr マイクロキャビティにおけるキャビティポラリトンの優れた熱的安定性を実証した。

参考文献

- [1] For a review, A. Kavkin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy, *Microcavities*, (Oxford University Press, 2007).
- [2] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, and Le Si Dang, *Nature* **443**, 409 (2006).
- [3] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. A* **53**, 4250 (1996).
- [4] M. Ueta, H. Kanzaki, K. Kobayashi, Y. Toyozawa, and E. Hanamura, *Excitonic Process in Solids* (Springer-Verlag, 1986).
- [5] M. S. Skolnick, T. A. Fisher, and D. M. Whittaker, *Semicond. Sci. Technol.* **13**, 654 (1998).
- [6] E. Mollwo, in *Physics of II–VI and I–VII Compounds, Semimagnetic Semiconductors*, ed. O. Madelung, M. Schulz, and H. Weiss (Springer, Berlin, 1982) Landolt-Börnstein New Series, Group III, Vol. 17.
- [7] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Börger, L. Sorba, F. Beltram, and F. Bassani, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3906 (1995).
- [8] C. F. Klingshirn, *Semiconductor Optics* (Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 2003) Chap. 4, p. 81.