

# CuCl マイクロキャビティにおけるラビ分裂エネルギーに対する光子場形状の効果

川上将輝、川瀬稔貴、宮崎健一、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

## Photon-field-shapes effects on Rabi splitting energies in CuCl microcavities

M. Kawakami, T. Kawase, K. Miyazaki, D. Kim, and M. Nakayama  
*Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Osaka City University*

We have investigated the photon-field-shape effects on Rabi splitting energies in CuCl microcavities with  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  distributed Bragg reflectors (DBRs). The photon-field shape was tuned to a node-type or an antinode-type by changing the order of the refractive indices in the DBR. In order to control of the Rabi splitting energies, the active-layer thickness was changed from  $\lambda/12$  to  $9\lambda/20$ . In angle-resolved reflectance spectra at 10 K, three cavity polaritons resulting from the strong coupling between the  $Z_3$  and  $Z_{1,2}$  excitons and cavity photon were clearly detected. We estimated the energies of the Rabi splitting energies, from the analysis of the cavity polariton dispersions using a phenomenological Hamiltonian for the strong exciton-photon coupling. The active-layer-thickness dependence of the Rabi splitting energies is explained by a semi-quantitative analysis taking account of the overlap between the exciton and photon-field wave functions. We have demonstrated that the photon-field shape drastically affects the active-layer-thickness dependence of the Rabi splitting energies.

### 1. はじめに

半導体マイクロキャビティは、励起子-光子相互作用の制御という観点から、近年盛んに研究が展開されている。半導体マイクロキャビティでは、キャビティ中に閉じ込められた励起子と光子が強結合することでキャビティポラリトンが形成される[1]。

本研究で対象とした CuCl マイクロキャビティは、CuCl の大きな励起子束縛エネルギー (~190 meV) によるキャビティポラリトンの熱的安定性から、基礎研究と応用の両面で注目されている。CuCl マイクロキャビティでは、 $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子と光子の相互作用が生じ、lower polariton branch (LPB)、middle polariton branch (MPB)、upper polariton branch (UPB) の 3 つの分散を持つキャビティポラリトンが形成される。これまで我々は、CuCl マイクロキャビティにおいて、3 つのキャビティポラリトン分散を明確に観測し [2-4]、励起子-光子相互作用の大きさを示すラビ分裂エネルギーの活性層厚依存性を解明した[4]。一方で、ラビ分裂エネルギーは、キャビティ中の光子場と励起子波動関数の重なりの大きさに依存するため[5]、活性層厚に加えて、光子場形状の影響を受ける。本研

究では、光子場形状のラビ分裂エネルギーに対する効果を解明することを目的として研究を行った。

### 2. 試料と実験方法

本研究で作製した CuCl マイクロキャビティは、上部と下部の分布ブラッグ反射鏡(DBR)に  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多層膜を使用し、その間に CuCl 活性層を配置した構造である。DBR は、rf マグネトロンスパッタリング法により室温で作製し、CuCl 活性層は、真空蒸着法により成長温度  $60^\circ\text{C}$  で作製した。活性層厚は、CuCl の  $Z_3$  励起子有効共鳴波長を  $\lambda$  ( $\lambda = \lambda_{Z(3)}/\epsilon_b^{1/2}$ [6]、 $\lambda_{Z(3)}$ :  $Z_3$  励起子共鳴波長、 $\epsilon_b$ : 背景誘電率)として、 $\lambda/12$  から  $9\lambda/20$  まで系統的に変化させた。また、すべての試料において、活性層はキャビティ層の中央に配置し、活性層の両端に  $\text{HfO}_2$  または  $\text{SiO}_2$  のスペーサー層を導入することでキャビティ全体の厚さが  $\lambda/2$  になるように設計している。なお、CuCl、 $\text{HfO}_2$ 、及び、 $\text{SiO}_2$  の屈折率はそれぞれ 2.36[7]、2.05[8]、1.50[8]である。また、キャビティ中の光子場形状を変化させるために、DBR を構成する  $\text{HfO}_2$  層と  $\text{SiO}_2$  層の順序を変えた 2 種類の試料の作製を行った。図 1

は光子場形状の異なる 2 種類のキャビティ構造を示しており、 $n_1$ と $n_2$ はDBRを構成する物質の屈折率を表している。図 1(a)で示す node キャビティでは、 $n_1 > n_2$ であり、光子場がキャビティの両端で節になる[5]。一方、図 1(b)で示す antinode キャビティでは、 $n_1 < n_2$ であり、光子場がキャビティの両端で腹になる[5]。また、DBR の周期数は、全ての試料で同程度の Q 値(~290)を得るために、node キャビティにおいて上部 8.5 周期、下部 9.5 周期、antinode キャビティにおいて上部 8 周期、下部 10 周期とした。

光学測定は、10 K での角度分解反射スペクトルを行った。入射光として Xe ランプを使用し、反射光を分解能 0.15 nm の 32 cm 分光器と空冷 CCD で受光した。

### 3. 実験結果と考察

図 2(a)は、活性層厚 $\lambda/8$ の node キャビティにおける角度分解反射スペクトルの実験結果を示している。DBR のストップバンドの内側に●、▲、■で示す 3 つの dip 構造が観測された。これらの dip 構造は、明確な角度依存性を有することから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。そこで、これらの dip 構造のエネルギーの入射角度依存性を、式(1)の  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子と光子の強結合に関する  $3 \times 3$  行列の現象論的ハミルトニアンを用いて解析した[2]。

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

ここで、 $E_{Z(3)}$ 、 $E_{Z(1,2)}$ は  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子のエネルギーを表し、 $\Omega_3$ 、 $\Omega_{1,2}$  は  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子におけるラビ分裂エネルギーを表している。また、 $E_{\text{cav}}(\theta)$ は励起子-光子相互作用を考慮しない場合のキャビティ中の光子のエネルギーを表しており、式(2)で与えられる[9]。

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

ここで、 $\theta$ 、 $E_0$ 、 $n_{\text{eff}}$  はそれぞれ入射角度、 $\theta=0^\circ$ におけるキャビティ中の光子のエネルギー、キャビティの有効屈折率を表している。図 2(b)は、図 2(a)で観測された 3 つの dip 構

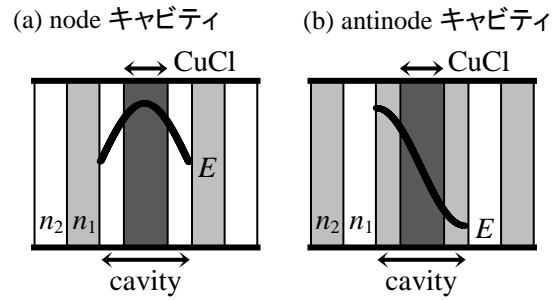


図 1(a) node キャビティ( $n_1 > n_2$ )と(b) antinode キャビティ( $n_1 < n_2$ )の概念図。 $E$  はキャビティ中の光子場の空間構造を表し、 $n_1$ と $n_2$ は DBR を構成する物質の屈折率を表す。

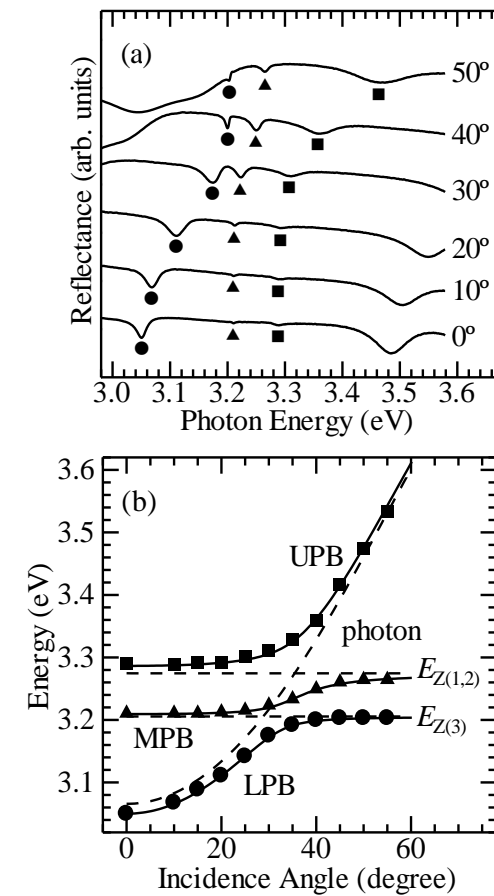


図 2(a) 活性層厚 $\lambda/8$ の node キャビティにおける角度分解反射スペクトル。(b) 角度分解反射スペクトルにおける dip 構造のエネルギーの入射角度依存性。実線は式(1)を用いた計算結果を示し、破線は励起子-光子相互作用を考慮しない場合のキャビティ中の光子と  $Z_3$ 、及び、 $Z_{1,2}$  励起子のエネルギーを示す。

造のエネルギーの入射角度依存性を示している。図中の実線は式(1)を用いて計算したキャビティポラリトン分散を示し、破線は励起

子-光子相互作用を考慮しない場合のキャビティ中の光子と、 $Z_3$ 、及び、 $Z_{1,2}$  励起子のエネルギーを示している。計算結果は dip 構造の入射角度依存性を良く再現していることから、3つの dip 構造は LPB、MPB、UPB に起因した信号であると結論付けられる。また、解析から得られたラビ分裂エネルギーは  $\Omega_3=55$  meV、 $\Omega_{1,2}=98$  meV である。

次に、光子場形状のラビ分裂エネルギーに対する効果を調べるため、活性層厚 $\lambda/8$ の antinode キャビティにおける角度分解反射スペクトルを測定した。図 3(a)は実験結果を示しており、図 3(b)はストップバンドの内側に観測された dip 構造のエネルギーの入射角度依存性を示している。antinode キャビティにおいてもキャビティポラリトンに起因した信号が明確に観測されている。また、式(1)を用いた解析から、 $\Omega_3=17$  meV、 $\Omega_{1,2}=30$  meV となり、node キャビティと比較して、光子場形状を antinode に変えることによりラビ分裂エネルギーが大きく減少することが明らかとなった。

図 4 は、node キャビティと antinode キャビティのラビ分裂エネルギーの活性層厚依存性を示している。図中の●、■は node キャビティにおける  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子のラビ分裂エネルギーを示し、○、□は antinode キャビティにおける  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子のラビ分裂エネルギーを示している。図より、系統的に antinode キャビティのラビ分裂エネルギーが node キャビティよりも小さいことが明らかである。そこで、光子場形状のラビ分裂エネルギーに対する効果を解明するため、量子井戸マイクロキャビティを仮定し、式(3)によりラビ分裂エネルギーを計算した[10]。

$$\Omega \propto \int d^3r F^{\alpha*}(x, r_{//}) u^{\alpha}(x, r_{//}) \quad (3)$$

ここで、 $\alpha$ は node、anti(antinode)を意味し、 $x$ 、 $r_{//}$ はキャビティと DBR の境界面からの距離、励起子重心運動の面内座標を表している。また、 $F^{\alpha}(x, r_{//})$ と  $u^{\alpha}(x, r_{//})$ は、励起子と光子場の包絡関数を表しており、式(4)、(5)、(6)で与えられる[10]。

$$F^{\alpha}(x, r_{//}) = \sqrt{\frac{1}{d}} \sin\left(\frac{\pi m(x - x_0^{\alpha})}{d}\right) \frac{e^{ik_{//} \cdot r_{//}}}{\sqrt{A}} \quad (4)$$

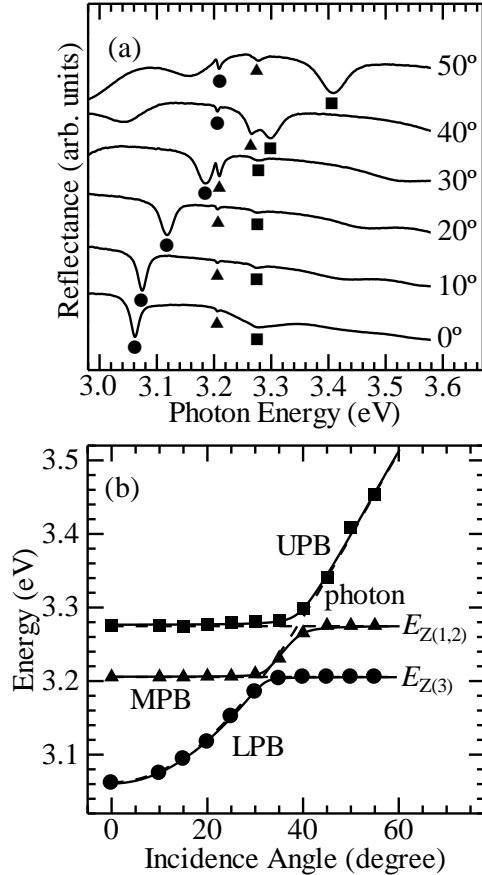


図 3(a) 活性層厚 $\lambda/8$ の antinode キャビティにおける角度分解反射スペクトル。(b) 角度分解反射スペクトルにおける dip 構造のエネルギーの入射角度依存性。実線は式(1)を用いた計算結果を示し、破線は励起子-光子相互作用を考慮しない場合のキャビティ中の光子と  $Z_3$ 、及び、 $Z_{1,2}$  励起子のエネルギーを示す。

$$u^{\text{node}}(x, r_{//}) = \sqrt{\frac{1}{L_{\text{eff}}^{\text{node}}}} \sin\left(\frac{\pi m' x}{L_{\text{eff}}^{\text{node}}}\right) \frac{e^{ik_{//} \cdot r_{//}}}{\sqrt{A}} \quad (5)$$

$$u^{\text{anti}}(x, r_{//}) = \sqrt{\frac{1}{L_{\text{eff}}^{\text{anti}}}} \cos\left(\frac{\pi m' x}{L_{\text{eff}}^{\text{anti}}}\right) \frac{e^{ik_{//} \cdot r_{//}}}{\sqrt{A}} \quad (6)$$

ここで、 $m$ と  $m'$ は量子数を表し、 $k_{//}$ 、 $A$ 、 $d$ はそれぞれ面内波数、規格化定数、活性層厚を表している。 $x_0^{\alpha}$ は活性層の位置を示し、 $x_0^{\alpha} = (L_{\text{eff}}^{\alpha} - d)/2$ で与えられる。また、 $L_{\text{eff}}^{\alpha}$ は有効キャビティ長であり、 $L_{\text{eff}}^{\alpha} = L_c + L_{\text{DBR}}^{\alpha}$ で表される。なお、 $L_c$ はキャビティ長を表し、 $L_{\text{DBR}}^{\alpha}$ は DBR への光の侵入長を表している[11]。簡単のため、 $\theta=0^{\circ}$ を考えると、 $L_{\text{DBR}}^{\alpha}$ は、式(7)、(8)で表される[11]。

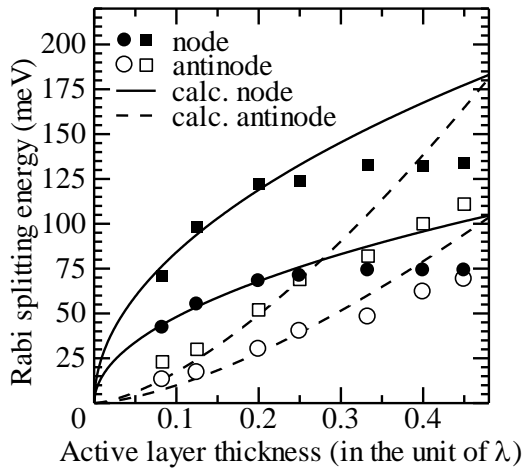


図4 node キャビティと antinode キャビティのラビ分裂エネルギーの活性層厚依存性。●、■は node キャビティにおける  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子のラビ分裂エネルギーを示し、○、□は antinode キャビティにおける  $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子のラビ分裂エネルギーを示す。実線と破線は、式(3)を用いて計算した node、及び、antinode キャビティのラビ分裂エネルギーを示している。

$$L_{\text{DBR}}^{\text{node}} = \frac{1}{2} \frac{\lambda_{Z(3)}}{n_1 - n_2} \quad (7)$$

$$L_{\text{DBR}}^{\text{anti}} = \frac{\lambda_{Z(3)}}{2} \frac{n_1 n_2}{n_c^2 (n_2 - n_1)} \quad (8)$$

ここで、 $n_c$  は CuCl の屈折率を表している。式(7)、(8)を用いて計算すると、 $L_{\text{DBR}}^{\text{node}} = 352$  nm、 $L_{\text{DBR}}^{\text{anti}} = 194$  nm である。図4の実線と破線が、式(3)を用いて計算した node キャビティと antinode キャビティの計算結果を示している。図より、 $d > \lambda/3$  では、計算結果が実験結果を再現できていないことがわかる。これは  $d > \lambda/3$  では、活性層厚が厚く、量子井戸マイクロキャビティという仮定が破綻するためと考えられる。一方で、 $d < \lambda/3$  では、計算結果は実験結果を良く再現していることがわかる。この結果は、node、及び、antinode キャビティにおけるラビ分裂エネルギーの活性層厚依存性の違いは、光子場形状に起因することを明確に示唆している。尚、このような光子場形状の効果の系統的な研究は、本研究が初めてのものである。

#### 4. まとめ

本研究では、光子場形状の異なる node と

antinode の CuCl マイクロキャビティを作製し、ラビ分裂エネルギーの活性層厚依存性を調べた。10 K での角度分解反射スペクトルから、全ての試料においてキャビティポラリトンの形成を明確に観測した。また、 $Z_3$ 、 $Z_{1,2}$  励起子と光子の強結合に関する現象論的ハミルトニアンを用いた解析から、ラビ分裂エネルギーを見積もった。更に、node、及び、antinode キャビティのラビ分裂エネルギーの活性層厚依存性に対して、光子場形状を考慮した解析を行った結果、実験結果を半定量的に説明することができ、光子場形状のラビ分裂エネルギーに対する効果を解明したと結論付けられる。

#### 参考文献

- [1] For a review, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy, *Microcavities* (Oxford University Press, Oxford, United Kingdom, 2007).
- [2] G. Oohata, T. Nishioka, D. Kim, H. Ishihara, and M. Nakayama, *Phys. Rev. B* **78**, 233304 (2008).
- [3] K. Miyazaki, D. Kim, T. Kawase, M. Kameda, and M. Nakayama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 042802 (2010).
- [4] M. Nakayama, K. Miyazaki, T. Kawase, and D. Kim, *Phys. Rev. B* **83**, 075318 (2011).
- [5] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Borger, L. Sorba, F. Beltram, and F. Bassani, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3906 (1995).
- [6] Y. Chen, A. Tredicucci, and F. Bassani, *Phys. Rev. B* **52**, 1800 (1995).
- [7] M. Ueta, H. Kanzaki, K. Kobayashi, Y. Toyozawa, and E. Hanamura, *Excitonic Processes in Solids* (Springer, New York, 1986), p. 116.
- [8] P. Torchio, A. Gatto, M. Alvisi, G. Albrand, N. Kaiser, and C. Amra, *Appl. Opt.* **41**, 3256 (2002).
- [9] M. S. Skolnick, T. A. Fisher, and D. M. Whittaker, *Semicond. Sci. Technol.* **13**, 645 (1998).
- [10] S. Pau, G. Björk, J. Jacobson, H. Cao, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. B* **51**, 14437 (1995).
- [11] G. Panzarini, L. C. Andreani, A. Armitage, D. Baxter, M. S. Skolnick, V. N. Astratov, J. S. Roberts, A. V. Kavokin, M. R. Vladimirova, and M. A. Kaliteevski, *Phys. Solid. Stat.* **41**, 1223 (1999).