

ZnO 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、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 ZnO microcavities

M. Kawakami, D. Kim, and M. Nakayama

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

We have investigated the photon-field-shape effect on the Rabi splitting energies in ZnO microcavities with $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ distributed Bragg reflectors (DBRs). The thickness of the ZnO active layer was fixed to $\lambda/2$ corresponding to a half of an effective resonant wavelength of the lowest-lying exciton. The photon-field shape was tuned to a node type or an antinode type by changing the order of the refractive indices in the DBRs. We obtained the cavity-polariton dispersions from angle-resolved reflectance spectra measured at 10 K. The Rabi splitting energies were evaluated from the analysis of the cavity-polariton dispersions with a phenomenological Hamiltonian for the strong coupling between the three kinds of excitons peculiar to ZnO labeled A, B, and C and the cavity photon. It was found that the Rabi splitting energies in the antinode-type microcavity are almost a half of those in the node-type microcavity. We semi-quantitatively analyzed the photon-field-shape effect, taking account of the overlap between the exciton and photon-field envelope functions.

1. はじめに

半導体マイクロキャビティでは、キャビティ中で励起子と光子が強く相互作用し、キャビティポラリトンが形成される。キャビティポラリトンには、ボーズ粒子性を有することから[1]、ボース・アインシュタイン凝縮[2]やポラリトンレーザー[3]の実現が期待されている。近年、半導体マイクロキャビティを構成する活性層媒質として、励起子の熱的安定性が優れる GaN[4]や ZnO[5]のようなワイドギャップ半導体が注目されており、室温でのポラリトンレーザー発振[4]が期待されている。

本研究で対象とした ZnO マイクロキャビティは、ZnO の大きな励起子束縛エネルギー(~ 60 meV)から、室温においてもキャビティポラリトンが安定に存在することが実証されている[6]。ZnO マイクロキャビティでは、A、B、C 励起子と光子の相互作用が生じ、lower polariton branch (LPB)、middle polariton branch 1 (MPB1)、middle polariton branch 2 (MPB2)、upper polariton branch (UPB)の4つの分散を持つキャビティポラリトンが形成される。マイクロキャビティの物理的特長を決定付ける重要なパラメータとして、ラビ分裂エネルギーがある。ラビ分裂エネルギーは、励起子-光子相互作用の大きさを表し、一般的に活性層厚を変えることで制御できる[7, 8]。一方、ラビ分裂エネルギーは、キャビティ中の光子場と励起子の包絡関数の重

なり積分に依存するため[9]、活性層厚に加えて光子場形状を変えることで制御可能である。本研究では、光子場形状の異なる2種類の ZnO マイクロキャビティを作製し、ラビ分裂エネルギーに対する光子場形状の効果を検証した。

2. 試料と実験方法

本研究で作製した ZnO 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 ZnO 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を用いて室温で作製し、ZnO 活性層は、パルスレーザー堆積法を用いて成長温度 600°C で作製した。活性層厚は、

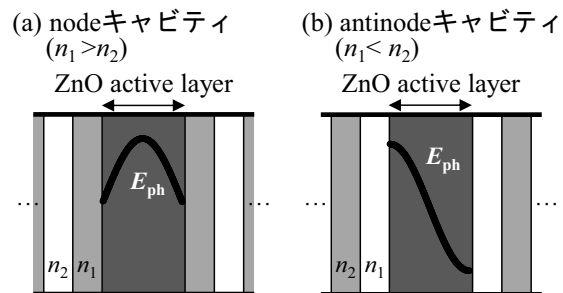


図1(a) node キャビティ($n_1 > n_2$)と(b) antinode キャビティ($n_1 < n_2$)の概略図。 E_{ph} はキャビティ中の光子場の空間構造を表し、 n_1 と n_2 は DBR を構成する物質の屈折率を表す。

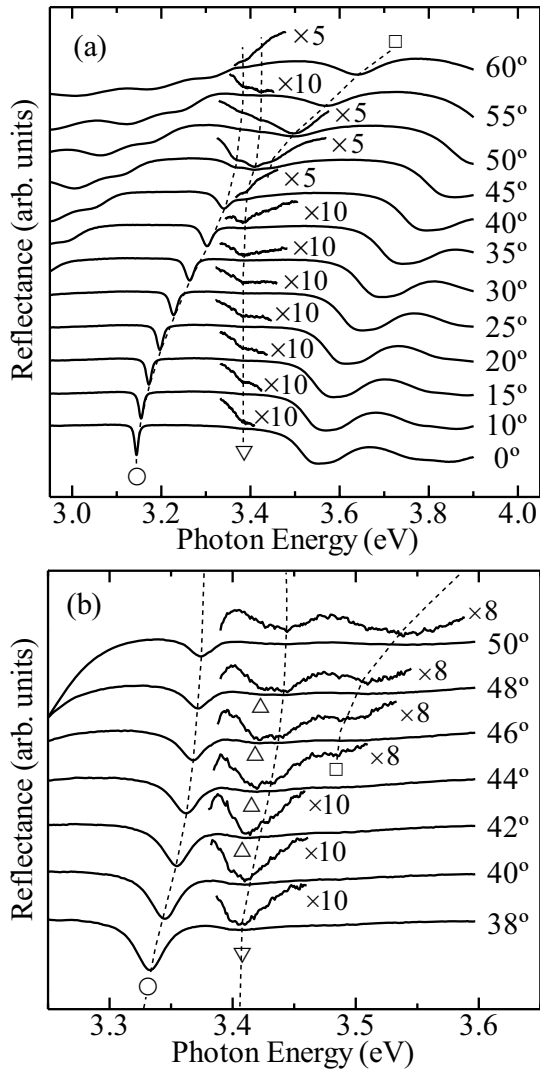


図2(a) 活性層厚 $\lambda/2$ の node キャビティにおける角度分解反射スペクトル。(b) 入射角度 45° 近傍での角度分解反射スペクトルの詳細図。

ZnO の A 励起子有効共鳴波長を λ ($\lambda = \lambda_A / \epsilon_b^{1/2}$ [10], λ_A : A 励起子共鳴波長, ϵ_b : 背景誘電率)として $\lambda/2$ に設計した。また、キャビティ中の光子場形状を変えるために、DBR を構成する HfO_2 層と SiO_2 層の順序を変えた 2 種類の ZnO マイクロキャビティを作製した。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 [7]。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 [7]。なお、 HfO_2 、及び、 SiO_2 の屈折率はそれぞれ 2.05、1.50 である [11]。DBR の周期数は、全ての試料で同程度の Q 値 (~300) を得るために、node キャビティにおいて上部 8.5 周

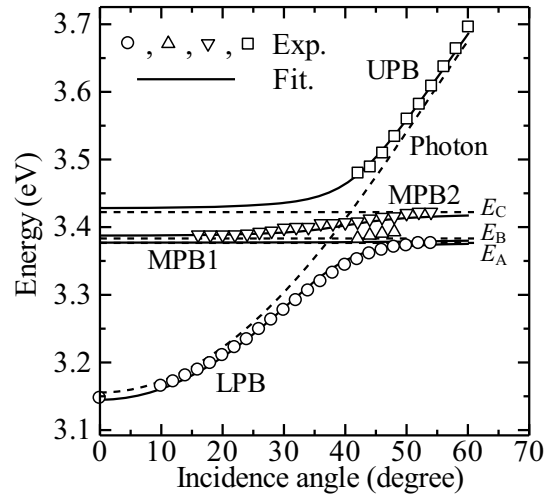


図 3 node キャビティにおける反射ディップエネルギーの入射角度依存性。実線は式(1)を用いたフィッティング結果を示し、破線はキャビティ光子と A、B、C 励起子のエネルギーを示す。

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。

光学特性に関しては、10 K での角度分解反射スペクトルの測定を行った。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 $\lambda/2$ 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おり、明確な角度依存性を有する O、 ∇ 、 \square で示す 3 つのディップ構造が観測されている。図 2(b) は、入射角度 45° 近傍の詳細な実験結果を示しており、図 2(a) の 3 つのディップ構造に加えて Δ で示すディップ構造が確認できる。これらの反射ディップエネルギーの入射角度依存性を、式(1)の A、B、C 励起子と光子の強結合に関する 4×4 行列の現象論的ハミルトニアンを用いて解析した [12]。

$$\begin{pmatrix} E_{\text{cav}}(\theta) & \Omega_A/2 & \Omega_B/2 & \Omega_C/2 \\ \Omega_A/2 & E_A & 0 & 0 \\ \Omega_B/2 & 0 & E_B & 0 \\ \Omega_C/2 & 0 & 0 & E_C \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで、 E_A, E_B, E_C は、A、B、C 励起子のエネルギーを表し、 $\Omega_A, \Omega_B, \Omega_C$ は A、B、C 励起子のラビ分裂エネルギーを表している。また、 $E_{\text{cav}}(\theta)$ はキャビティ光子(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)のエネルギーであり、式(2)で与えられる [13]。

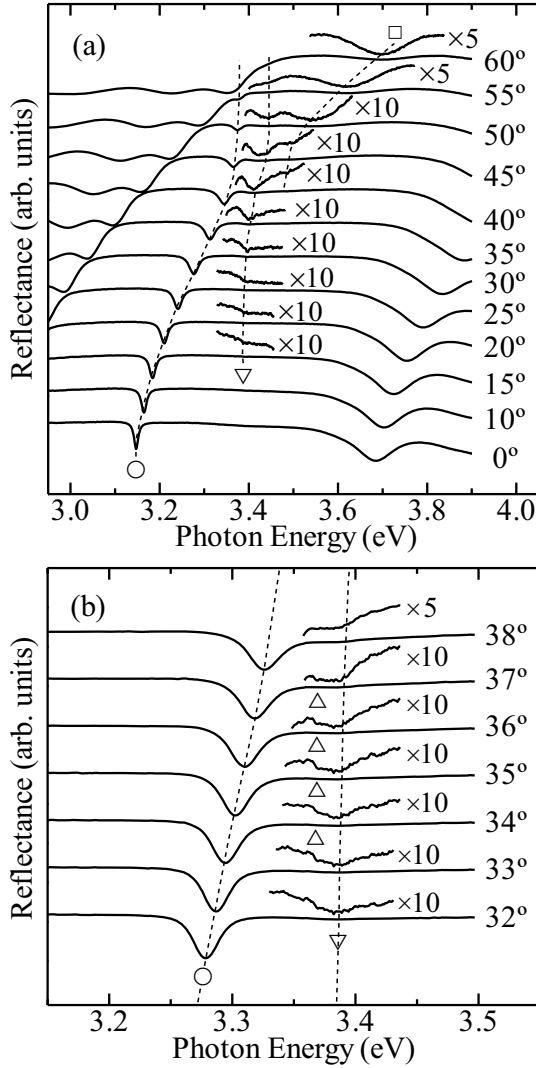


図 4(a) 活性層厚 $\lambda/2$ の antinode キャビティにおける角度分解反射スペクトル。(b) 入射角度 35° 近傍での角度分解反射スペクトルの詳細図。

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

ここで、 θ 、 E_0 、 n_{eff} はそれぞれ入射角度、 $\theta=0^\circ$ におけるキャビティ光子のエネルギー、キャビティの有効屈折率を表している。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[13]。解析では、A、B、C 励起子の振動子強度の比から、ラビ分裂エネルギーの比を $\Omega_A:\Omega_B:\Omega_C=1:2.5:2.8$ に固定し、 Ω_A 、 E_0 、 n_{eff} をフィッティングパラメータとして計算を行った。なお、振動子強度の計算には、式(3)を用いた[14]。

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

ここで、 E_L 、 E_T は縦型、横型励起子エネルギー

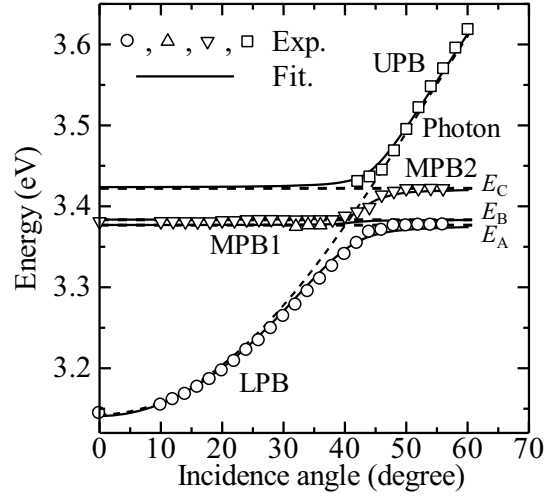


図 5 antinode キャビティにおける反射ディップエネルギーの入射角度依存性。実線は式(1)を用いたフィッティング結果を示し、破線はキャビティ光子と A、B、C 励起子のエネルギーを示す。

である。図 3 は、図 2 で観測された 4 つの反射ディップ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、破線はキャビティ光子と A、B、C 励起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現しており、 \circ 、 \triangle 、 ∇ 、 \square 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、解析から得られたラビ分裂エネルギーは $\Omega_A=32$ meV、 $\Omega_B=75$ meV、 $\Omega_C=88$ meV である。

次に、ラビ分裂エネルギーに対する光子場形状の効果調べるため、活性層厚 $\lambda/2$ 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 4(a)、(b) は実験結果を示しており、図 5 は観測された 4 つの反射ディップ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、 $\Omega_A=15$ meV、 $\Omega_B=35$ meV、 $\Omega_C=41$ meV となり、node キャビティと比較して、光子場形状を antinode に変えることで、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。また、その比は、 $\Omega_{\text{node}}:\Omega_{\text{anti}}=1:0.48$ である。

この結果について、量子井戸型のマイクロキャビティモデルに基づいて、式(3)を用いてラビ分裂エネルギーを計算することで議論する[9]。

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

ここで、 α は node、anti(antinode)を意味し、 x 、 r_{\parallel}

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、 $F^\alpha(x, r_{ij})$ と $u^\alpha(x, r_{ij})$ 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[9]。

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

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

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

ここで、 m と m' は量子数を表し、 k_j 、 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^α 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_{eff}^α 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。ここで、 L_c はキャビティ長を表し、 L_{DBR}^α はDBRへの光の侵入長を表している[15]。なお、本研究の場合 $L_c = d$ である。簡単のため、 $\theta = 0^\circ$ を考えると、 L_{DBR}^α は、式(8)、(9)で表される。

$$L_{\text{DBR}}^{\text{node}} = \frac{1}{2} \frac{\lambda_{Z(3)}}{n_1 - n_2} \quad (8)$$

$$L_{\text{DBR}}^{\text{anti}} = \frac{\lambda_{Z(3)}}{2} \frac{n_1 n_2}{n_c^2 (n_2 - n_1)} \quad (9)$$

ここで、 n_c はZnOの屈折率を表している。ラビ分裂エネルギーに対する光子場形状の効果을明らかにするために、DBRへの光の侵入長を考慮し、式(3)を用いて node キャビティのラビ分裂エネルギーに対する antinode キャビティのラビ分裂エネルギーの比を計算した。計算結果は $\Omega_{\text{node}}:\Omega_{\text{anti}}=1:0.45$ となり、実験結果である $\Omega_{\text{node}}:\Omega_{\text{anti}}=1:0.48$ とよく一致する。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違いが光子場形状に起因することを明確に示している。

4. まとめ

本研究では、光子場形状の異なる2種類のZnOマイクロキャビティを作製し、10 Kでの角度分解反射スペクトルを測定した。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り、node キャビティと比べて antinode キャビティのラビ分裂エネルギーが大きく減少することを明らかにした。さらに、量子

井戸型のマイクロキャビティのモデルを用いて node キャビティのラビ分裂エネルギーに対する antinode キャビティのラビ分裂エネルギーの比を計算し、その違いが光子場形状に起因していることを明らかにした。

参考文献

- [1] For a review, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech, and F. P. Laussy, *Microcavities*, Oxford University Press, 2007.
- [2] J. Kasprzak, D. D. Solnyshkov, R. André, Le Si Dang, and G. Malpuech, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 146404-1 (2008).
- [3] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. A* **53**, 4250 (1996).
- [4] S. Christopoulos, G. Baldassarri Höger von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltin, J.-F. Carlin, and N. Grandjean, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 126405-1 (2007).
- [5] M. Nakayama, S. Komura, T. Kawase, and D. Kim, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 093705-1 (2008).
- [6] T. Kawase, K. Miyazaki, D. Kim, and M. Nakayama, *J. Appl. Phys.* **112**, 093512-1 (2012).
- [7] A. Tredicucci, Y. Chen, V. Pellegrini, M. Börger, L. Sorba, F. Beltram, and F. Bassani, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3906 (1995).
- [8] M. Nakayama, K. Miyazaki, T. Kawase, and D. Kim, *Phys. Rev. B* **83**, 075318-1 (2011).
- [9] S. Pau, G. Björk, J. Jacobson, H. Cao, and Y. Yamamoto, *Phys. Rev. B* **51**, 14437 (1995).
- [10] Y. Chen, A. Tredicucci, and F. Bassani, *Phys. Rev. B* **52**, 1800 (1995).
- [11] P. Torchio, A. Gatto, M. Alvisi, G. Albrand, N. Kaiser, and C. Amra, *Appl. Opt.* **41**, 3256 (2002).
- [12] G. Oohata, T. Nishioka, D. Kim, H. Ishihara, and M. Nakayama, *Phys. Rev. B* **78**, 233304-1 (2008).
- [13] M. S. Skolnick, T. A. Fisher, and D. M. Whittaker, *Semicond. Sci. Technol.* **13**, 645 (1998).
- [14] C. F. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, Springer, 2003, Chap. 4, pp. 79-85.
- [15] 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).