

# CuBr マイクロキャビティにおけるポラリトン凝縮状態での ポラリトン分散関係

植田誠史、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

Polariton dispersion relation under polariton condensation in a CuBr microcavity

Masafumi Ueda and Masaaki Nakayama

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

We have investigated the exciton polariton condensation in a CuBr microcavity with  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  distributed Bragg reflectors from the view point of condensation effects on polariton dispersion relations. The excitation power density dependence of the photoluminescence (PL) intensity and band width of the lower polariton branch at an in-plane wave vector of  $k_{\parallel}=0$  exhibits a threshold-like increase and decrease, respectively. With the use of angle-resolved PL spectroscopy, we found that a blueshifted flat dispersion relation appears under the polariton condensation. The flat dispersion relation was quantitatively analysed using a theory for a diffusive Goldstone mode.

## 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]。キャビティポラリトンはボース粒子性を示し、混成した光子性を反映して非常に軽い有効質量を持つことから、ボース・アインシュタイン凝縮やポラリトンレーザー発振[2]などへの応用が期待されている。

本研究で対象とした CuBr マイクロキャビティでは、CuBr 特有の大きな励起子束縛エネルギー(108 meV)と励起子振動子強度を反映し、極めて強い励起子-光子相互作用が生じ、キャビティポラリトンが室温まで安定に存在できる[3]。Nakayama らは、CuBr マイクロキャビティにおけるポラリトン凝縮の発光特性を詳細に調べ、発光強度の増加、発光バンド幅の減少、発光エネルギーのブルーシフト、及び、発光寿命の減少が閾値的に生じることを確かめた[4]。

文献[5]によると、非平衡状態でのポラリトン凝縮体は、平衡状態における Bogoliubov モードとは異なり、拡散モードである diffusive Goldstone モードとなる。diffusive Goldstone モードでは、面内波数ベクトル  $k_{\parallel}=0$  近傍で分散関係がフラットになることが理論的に示されている。[5]。

本研究では、CuBr マイクロキャビティにおけるポラリトン凝縮体の分散関係を、角度分解発光スペクトルを用いて測定し、diffusive Goldstone モードの理論[5]に基づいて解析した。

## 2.試料作製と実験方法

本研究で作製した CuBr マイクロキャビティは、上部と下部 DBR として  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  多層膜を用い、その間に CuBr 活性層を配置した構造である。DBR は、 $\text{HfO}_2$  層と  $\text{SiO}_2$  層を一周期として(各層厚は $\lambda/4$ :  $\lambda$ は励起子有効波長)、下部は 15.5 周期、上部は 12.5 周期積層した。活性層の設計膜厚は、 $\lambda=208$

nm 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、CuBr 活性層の作製には、真空蒸着法（真空度  $5.0 \times 10^{-6}$  Pa）を用いた。光学特性に関しては、角度分解反射スペクトル、角度分解発光スペクトルの測定を行った。測定温度は全て 77 K である。角度分解反射スペクトルの光源には 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）に取り付けられた冷却 CCD を用いた。角度分解発光スペクトルの励起光源として YAG レーザー（繰り返し周波数: 10 kHz、パルス幅: 1 ns）の第 3 高調波（355 nm）を用いた。検出は、上記と同じである。

### 3.実験結果と考察

図 1 の黒丸と白丸は、角度分解反射スペクトルより求められたキャビティポラリトン分散関係を示している。試料成長方向の波数ベクトルが量子化されるため、入射角度  $\theta$  は、以下の式(1)により、面内波数  $k_{//}$  に変換できる。

$$k_{//} = \frac{E_0}{\hbar c} \frac{\sin \theta}{\sqrt{1 - \sin^2 \theta / n_c^2}} \quad (1)$$

$E_0$  は  $k_{//}=0$  におけるキャビティ光子エネルギー、 $n_c$  はキャビティ層の有効屈折率、 $c$  は光速を表している。CuBr マイクロキャビティでは、3 種類の  $Z_f$ 、 $Z_{1,2}$ 、及び、 $Z_3$  励起子とキャビティ光子との強結合によって、lower polariton branch (LPB)、middle polariton branch 1 (MPB1)、MPB2、及び、upper polariton branch (UPB) が形成される。実線は、励起子 - 光子相互作用に関する現象論的ハミルトニアン[3]を用いて計算したキャビティポラリトン分散を示しており、破線は、キャビティ光子と励起子のエネルギーを示している。図 1 より、実験結果と計算結果は良く一致しており、観測された反

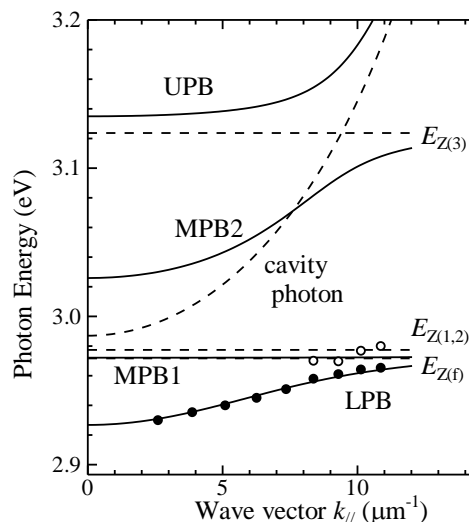


図 1: キャビティポラリトン分散関係。黒丸と白丸は、角度分解反射スペクトルから得られた実験結果、実線は現象論的ハミルトニアンを用いた計算結果、破線はキャビティ光子エネルギーと 77 K における吸収スペクトルにより求められた  $Z_f$ 、 $Z_{1,2}$ 、及び、 $Z_f$  励起子エネルギー  $E_{Z(f)}$ 、 $E_{Z(1,2)}$ 、及び、 $E_{Z(3)}$  を示している。

射ディップが、キャビティポラリトンに帰属される。また、現象論的ハミルトニアンによる解析から、 $Z_f$ 、 $Z_{1,2}$ 、及び、 $Z_3$  励起子のラビ分裂エネルギーは、それぞれ 29 meV、99 meV、及び、77 meV、離調度は +15 meV と見積もられた。さらに、10 K において入射角  $0^\circ$  における反射スペクトルから見積もった  $Q$  値は、936 であった。

次に、面内波数ベクトル  $k_{//}=0$  における、発光特性について述べる。図 2(a)は、LPB 発光の積分発光強度と半値全幅の励起密度依存性を示している。破線で示す励起密度 5.6 W/cm<sup>2</sup> において、LPB 積分発光強度が閾值的に増大し、半値全幅が急激に減少していることが明らかである。これはポラリトン凝縮により、基底状態におけるキャビティポラリトンの占有数が急激に増加したことを反映している。

図 2(b)は、LPB 発光におけるピークエネルギーの励起密度依存性を示している。励起

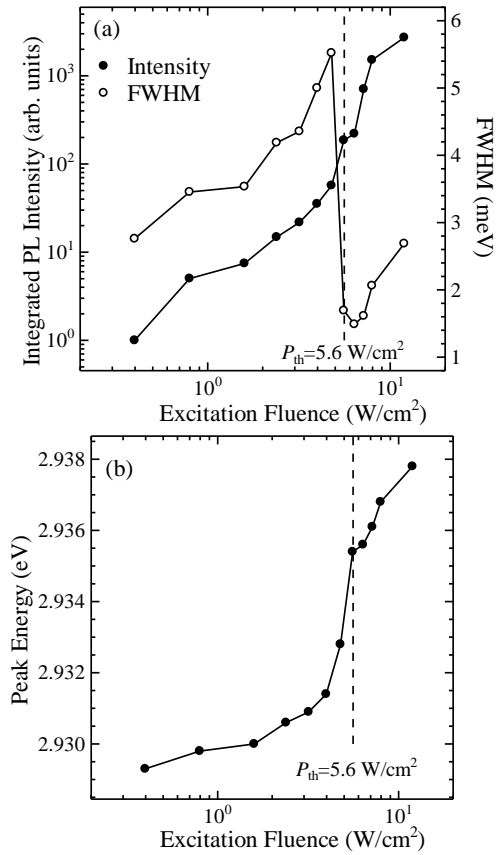


図2: 受光角度  $0^\circ$  ( $k_{\parallel}=0$ )での LPB 発光における(a)積分発光強度(黒丸)と半値全幅(白丸)、及び、(b)発光ピークエネルギーの励起密度依存性。破線は閾値の  $5.6 \text{ W}/\text{cm}^2$ を示している。

密度の増加に伴って、低密度領域では LPB の発光ピークエネルギーはわずかにブルーシフトを示し、閾値近傍で急激にブルーシフトしている。これは、ポラリトン-ポラリトン相互作用が劇的に大きくなっていることを示している。

次に、ポラリトン凝縮における LPB 分散関係について述べる。図3は、励起密度がそれぞれ(a)3.2、(b)5.6、(c)12  $\text{W}/\text{cm}^2$ における発光スペクトルの面内波数ベクトル依存性のイメージマップを示している。実線(点線)は、図1に示した LPB (キャビティ光子)の分散関係を示している。励起密度  $3.2 \text{ W}/\text{cm}^2$ では、発光強度は広い波数空間に広がっており、その分散は、図1に示

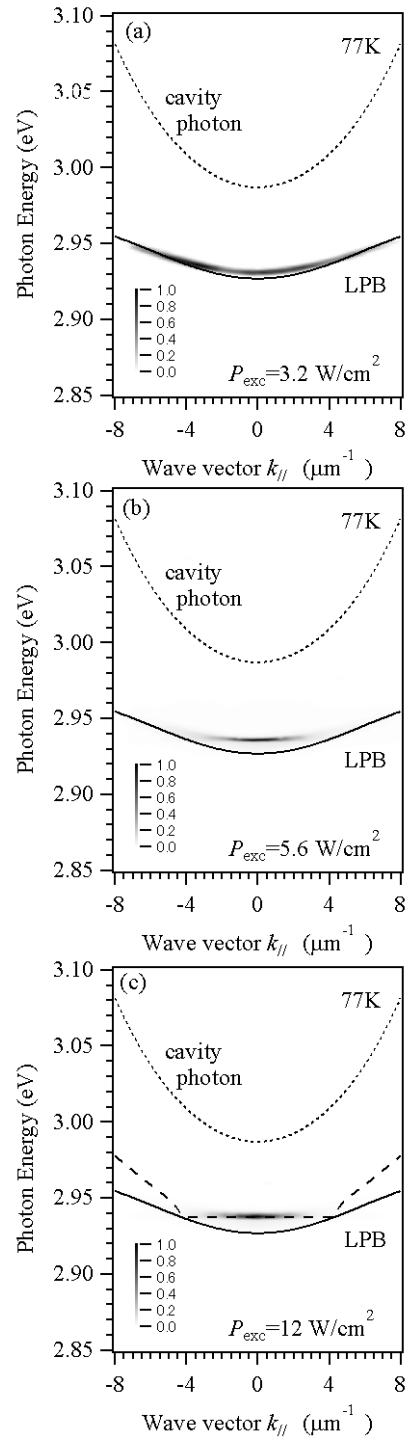


図3: (a)3.2、(b)5.6、(c)12  $\text{W}/\text{cm}^2$ における角度分解発光スペクトルのイメージマップ。強度は、グレイスケールで表している。実線と点線は、それぞれ LPB とキャビティ光子の分散関係を表している。(c)の破線は、式(2)と(3)を用いて計算した diffusive Goldstone モードの分散関係を示している。

した LPB 分散関係と一致している。閾値である励起密度  $5.6 \text{ W/cm}^2$  で、 $k_{\parallel}=0$  近傍に、凝縮状態であるブルーシフトした発光バンドが現れ、 $k_{\parallel}=0$  近傍でフラットな分散関係を示している。一方、非凝縮状態の発光バンドは、消滅している。このフラットな分散関係は、非平衡状態におけるポラリトン凝縮である *diffusive Goldstone* モードの特徴を反映している[5]。

以下では、最も励起密度が高い条件の図 3(c)における凝縮状態でのフラットな発光分散について定量的に解析をする。文献[5]に基づく、*diffusive Goldstone* モードの分散関係は次のように表される。

$$\omega_G(k_{\parallel}) = \omega_B(0) - i\frac{\Gamma}{2} + \sqrt{[\omega_B(k_{\parallel}) - \omega_B(0)]^2 - \frac{\Gamma^2}{4}} \quad (2)$$

ここで、 $\omega_B(k_{\parallel})$ と $\Gamma$ は、Bogolubov モードの分散関係と有効緩和速度を表している。

Bogoliubov モードの分散関係は次式で与えられる。

$$\omega_B(k_{\parallel}) = \omega_B(0) + \sqrt{\frac{\hbar k_{\parallel}^2}{2M_{\text{LP}}} \left( \frac{\hbar k_{\parallel}^2}{2M_{\text{LP}}} + 2\mu \right)} \quad (3)$$

ここで、 $M_{\text{LP}}$ は LPB の有効質量、 $\mu$ は凝縮体中のポラリトン-ポラリトン相互作用に関連するパラメータである。 $k_{\parallel}=0$  における  $M_{\text{LP}}$  は、LPB 分散関係  $E_{\text{LP}}(k_{\parallel})$  から、 $1/M_{\text{LP}} = \hbar^{-2} \partial^2 E_{\text{LP}}(0) / \partial k_{\parallel}^2$  を用いることにより、 $M_{\text{LP}} = 6.4 \times 10^{-5} m_0$  と求められる。 $m_0$  は自由電子質量である。 $\hbar\omega_B(0)$ は、ポラリトン凝縮に起因する発光バンドの  $k_{\parallel}=0$  におけるピークエネルギーに相当する。式(2)の実部が、*diffusive Goldstone* モード分散関係に対応する。フィッティングパラメータは $\Gamma$ と $\mu$ であり、図 3(c)の破線は、式(2)と(3)を用い

たフィッティング結果を表しており、 $\Gamma/(2\pi) = 6.4 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ 、 $\hbar\mu = 5.5 \text{ meV}$  が得られた。フィッティング結果が、ポラリトン凝縮に起因する発光のフラットな分散関係と良く一致していることから、ポラリトン凝縮状態での LPB 分散関係は、非平衡凝縮状態である *diffusive Goldstone* モードであると結論できる。

#### 4.まとめ

本研究では、DBR 型 CuBr マイクロキャビティを対象として、77 K におけるポラリトン凝縮状態を、角度分解発光スペクトルの観点から調べた。 $k_{\parallel}=0$  における LPB 発光の励起密度依存性から、積分発光強度の増加、半値全幅の減少、ピークエネルギーのブルーシフトが閾値的に観測された。これは、ポラリトン凝縮を明確に反映している。角度分解発光スペクトルの測定では、閾値以上において、フラットな分散関係が得られた。この分散関係は、非平衡凝縮状態特有の *diffusive Goldstone* モードの理論に基づいて、定量的に説明できることを示した。

#### 謝辞

本研究は、JSPS 科研費 NO.15H03678 の助成を受けたものである。

#### 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, 2007).
- [2] D. Sanvitto and V. Timofeev, *Exciton Polaritons in Microcavities* (Springer, Berlin, 2012).
- [3] M. Nakayama, Y. Kanatani, T. Kawase, and D. Kim, *Phys. Rev. B* **85**, 205320 (2012).
- [4] M. Nakayama, K. Murakami, Y. Furukawa, and D. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 021903 (2014).
- [5] M. Wouters and I. Carusotto, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 140402 (2007).