

称号及び氏名 博士（理学） 吉野 慎吾

学位授与の日付 平成 26 年 3 月 31 日

論文名 **Optical Properties of CuCl Microcavities and Dynamical Interference between Rabi Oscillation and Coherent Phonon**
(CuCl 微小共振器の光学特性と Rabi 振動と
コヒーレントフォノン間の動的干渉効果)

論文審査委員 主査 溝口 幸司
副査 久保田 佳基
副査 田中 智
副査 河相 武利

論文要旨

本論文では共振器ポラリトンの光学特性と Rabi 振動－コヒーレントフォノン間の干渉現象に関する研究について報告し、その内容は全 4 章で構成される。Chapter 1 は Introduction である。背景として、本研究において重要な概念となる量子干渉や共振器ポラリトンについて紹介する。また研究の動機や独自性について先行研究を踏まえて説明する。Chapter 2 の内容は Optical Properties of CuCl Microcavities である。本研究で着目する Rabi 振動を研究するうえで Rabi 分裂エネルギーの制御が重要となる。そこで、まずは定常状態において様々な活性層厚におけるバルク CuCl 微小共振器の光学特性について調べた。定常光学測定によって求めた共振器ポラリトンの分散関係や、さらには Rabi 分裂エネルギーの制御について報告する。また、共振器構造に対して膜厚揺らぎを新たに取り入れた理論計算による、共振器ポラリトンの反射スペクトルの再現について述べる。Chapter 3 では Ultrafast Dynamics of CuCl Microcavities について述べる。Pump-Probe 法を用いて 2 つの共振器ポラリトン間の量子ビートである Rabi 振動の観測を行ったところ、Rabi 振動が半導体中の格子振動であるコヒーレントフォノンとの間で干渉を生じることを初めて見出した。この Rabi 振動とコヒーレントフォノン間の干渉の特徴は以下のとおりである。(i) Rabi 振動とコヒーレントフォノンは共に不連続準位にも関わらず、連続準位と不連続準位間の干渉である Fano 干渉下におけるスペクトルと同様の非対称な周波数領域スペクトルを発現する。(ii) 共振器ポラリトンの性質を反映して、入射光の角度や偏光によって Rabi 振動とコヒーレントフォノン間の干渉をコヒーレント制御することができる。(i)における非対称なスペクトル形状は結合振動子系の古典運動方程式を用いて再現でき、その起源が Rabi 振動とコヒーレントフォノン間の位相差にあることを見出した。また、(ii)については一般に過渡的に生じる量子振動と物質固有の振動間の動的干渉のコヒーレ

ント制御について、新たな知見を与えるものである。Chapter 4 では以上の内容についてのまとめを行う。

I Chapter 1 Introduction

量子干渉は物理において非常に本質的な現象である。ある二つの状態の重ね合わせ状態が形成されたとき量子干渉を生じる。様々なタイプの量子干渉や関係する現象についての報告がなされており、そのうち二つの重要な内容について紹介する。Fano 干渉は連続状態と不連続状態間の干渉であり、非対称なスペクトル形状を生じることで知られている。様々な系において定常的な Fano 干渉の報告がなされてはいるが、時間領域において二つの不連続状態間の動的な干渉を生じさせ、その結果として周波数領域で非対称なスペクトルを生じさせるという報告は無い。また、励起子量子ビートは極度の振動を伴うため、コヒーレントフォノンと結合することが知られている。ここで、量子ビートは二つの状態間の干渉であり、過渡的な量子振動である。しかしながら、このような過渡的な量子振動とコヒーレントフォノン間の結合がどのように生じ、発展していくのか、といった観点を持った研究はほとんどなされていない。以上の現状をまとめると、二つの不連続状態とみなせる量子振動とコヒーレントフォノン間の動的な干渉や結合状態について調べることは、干渉現象についての新たな知見を得るということやそのコヒーレント制御といった観点から非常に意義があるといえる。

本研究では上記の量子振動として Rabi 振動に着目する。Rabi 振動は、半導体微小共振器において実現される共振器ポラリトン間の量子ビートである。半導体微小共振器はファブリーペロー型の共振器であり、共振器モードと呼ばれる光の閉じ込め状態を実現する。この共振器モードが励起子と強結合することにより共振器ポラリトンを実現する。これまでに半導体微小共振器における Rabi 振動はいくつかの報告例があるにとどまっており、これまであまり注目されてこなかった。しかしながら、量子振動として注目した場合、上記の励起子量子ビートなどとは異なる性質を持つと考えられる。そこで本研究では以上の背景を踏まえて、上記の共振器ポラリトンの特性に基づいた性質を持つ Rabi 振動とコヒーレントフォノン間の動的干渉に着目した。

I Chapter 2 Optical Properties of CuCl Microcavities

Rabi 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 Rabi 分裂エネルギーを制御することが、Rabi 振動を観測するうえで重要となる。そこで本研究ではまず、大きな振動子強度により共振器ポラリトンの研究に適した CuCl 微小共振器を用いて、Rabi 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。実験は作製した微小共振器に対して角度分解反射もしくは透過スペクトルを測定することによって行った。実験結果の解析を行ったところ、各試料に対して共振器ポラリトンの観測に成功した。また、Rabi 分裂エネルギーは、活性層厚を変化させることにより制御することができ、本研究では活性層厚を $l/16 - 2l$ ($\lambda = l_{ex}/n_b$; l_{ex} は励起子共鳴波長、 n_b は背景屈折率) の範囲で変化させることにより、CuCl の Z_3 励起子に対する Rabi 分裂エネルギーを約 10–140 meV の範囲で制御することに成功した。このような広範囲にわたる Rabi 分裂エネルギーの制御は他の無機半導体微小共振器では実現しえない。

さらに共振器ポラリトンの反射スペクトルを理論計算によって再現した。これまでに CuCl

微小共振器の反射スペクトルに対して非局所応答理論を用いた理論計算は行われていたが、実験結果と計算結果は定量的には一致していなかった。本研究ではこの不一致が共振器構造中の界面における、表面ラフネスなどに起因する膜厚の揺らぎにあると考えた。そこで膜厚揺らぎモデルを提唱し理論計算に組み込んでその効果を調べた。次に膜厚揺らぎを導入して反射スペクトルの理論計算を行ったところ、実験結果に見られる各構造のエネルギー位置や幅、数まで大変良く一致した。このことは本研究で用いたようなバルク半導体微小共振器の光学特性を設計するうえで、 Q 値や Rabi 分裂エネルギーに影響を与える膜厚揺らぎの概念が非常に重要で必須であることを意味する。

I Chapter 3 Ultrafast Dynamics of CuCl Microcavities

Pump-Probe 法を用いて Rabi 振動とコヒーレントフォノン間の動的干渉を初めて見出した。超短パルスレーザーによって二つの共振器ポラリトンモードを同時に励起すると、時間分解信号において量子ビートである Rabi 振動とコヒーレントフォノンが観測された。この信号をフーリエ変換すると、Rabi 振動に由来するブロードなバンド構造と、CuCl の縦光学(LO)フォノンの振動数位置 ω_{LO} における非対称な構造が確認できた。この非対称な形状は典型的な Fano 干渉に見られるスペクトル形状に類似していた。また、Pump 光の入射角を変化させることによって Rabi 振動の振動数を変化させると、Rabi 振動の振動数が ω_{LO} を低周波数側から横切る際に、 ω_{LO} 付近の構造がディップ構造から非対称構造を経てピーク構造に変化することを見出した。この非対称なスペクトル形状の起源を理解するために、Rabi 振動とコヒーレントフォノンを古典振動子とみなし、結合振動子系を形成しているとして系の運動方程式を解いた。その結果、系の時間発展 $f(t)$ は Pump 光によって駆動された Rabi 振動と、結合を通して Rabi 振動に駆動されるコヒーレントフォノンの重ね合わせ状態となることが分かった。このときコヒーレントフォノンは Rabi 振動との結合振動モードを形成しているが、Rabi 振動の減衰がコヒーレントフォノンに比べて非常に速いため、駆動後、直ちに Rabi 振動が減衰してしまいコヒーレントフォノンのみが生き残る。これが Rabi 振動とコヒーレントフォノン間の動的干渉の様子である。また、Rabi 振動によって間接的に駆動されたコヒーレントフォノンは、二つの振動の振動数が等しい場合、Pump 光によって直接駆動された Rabi 振動に比べて位相が $\pi/2$ だけ遅れて振動する。この位相差がスペクトル形状における非対称性の起源となることが考えられ、実際に $f(t)$ をフーリエ変換したスペクトルは実験結果を良く再現した。

最後に Pump 光の偏光を変化させることにより、コヒーレントフォノンに対する Rabi 振動の相対位相を変化させることができることを実験的に示した。コヒーレントフォノンに対する Rabi 振動の相対位相を変化させることにより、フーリエ変換スペクトルにおいて ω_{LO} 付近の非対称な構造を連続的に変化させることに成功した。このような動的干渉のコヒーレント制御の報告はこれまで全くない。以上の結果から、本研究は Rabi 振動のような過渡的に生じる量子振動と物質固有の振動との間の動的干渉についての新たな知見と、そのコヒーレント制御の方法を提供するものである。

I Chapter 4 Conclusion

本章では本研究の成果を総括している。

審査結果要旨

半導体試料を共振器構造内に閉じ込めた半導体微小共振器は、光と物質との相互作用を明らかにするためのモデル試料として着目されており、様々な物理現象が見出されている。本研究では、電子と正孔がクーロン力によって互いに束縛された状態である励起子と、共振器中の光子とが相互作用することによって生じる共振器ポラリトンに関して、共振器ポラリトンの定常状態の光学特性、および、共振器ポラリトンと他の準粒子との結合ダイナミクスを明らかにすることを目的に、研究を行っている。特に、2つの共振器ポラリトン間の量子干渉現象である **Rabi** 振動と、時空間領域で位相を揃えた振動であるコヒーレントフォノンとの間の動的結合、および、これらの2つの量子振動の間に生じる動的干渉を世界で初めて明らかにしている。

本論文では、**CuCl** 半導体微小共振器における **Rabi** 振動とコヒーレントフォノンの結合ダイナミクス、および、動的干渉を明らかにすることを主目的とし、以下の2つの内容について報告している。

本研究で着目する **Rabi** 振動を研究する上で、**Rabi** 分裂エネルギーの制御が重要となる。そこで、様々な半導体微小共振器を作製し、定常状態の共振器ポラリトンの光学特性を調べている。この定常光学測定から、共振器ポラリトンのエネルギー分散を明らかにし、半導体の層厚を変えることで、**Rabi** 分裂エネルギーの制御に成功している。また、**Rabi** 分裂エネルギーの制御には、共振器中の励起子および光子の空間構造の制御が重要であることを示唆している。

上記の作製した半導体微小共振器試料における、**Rabi** 振動とコヒーレントフォノンの動的結合、および、動的干渉を明らかにすることを目的に、フェムト秒パルスレーザーを用いた透過型ポンプ・プローブ分光測定を行っている。ポンプ・プローブ分光測定結果から、双極子相互作用を通して、コヒーレントフォノンと **Rabi** 振動が結合していることを明らかにしている。また、**Rabi** 振動とコヒーレントフォノンとの間で動的干渉が生じることを初めて見出している。特に、この2つの量子振動は共に不連続準位の振動現象にも関わらず、連続準位と不連続準位間の干渉である **Fano** 干渉に似た、非対称な周波数領域スペクトルが発現することを見出している。この特異な干渉現象の物理的原因を、古典振動子モデルを用いた計算結果との比較から明らかにしている。

以上のように本研究において、半導体微小共振器中の **Rabi** 振動とコヒーレントフォノンの動的結合と動的干渉の発見・解明は卓越した成果であり、高く評価できる。また、この成果は、物理分野のみならず、応用分野、および、化学や生物の分野における超高速量子現象を対象とした研究領域にも多大なる影響を与えるものと期待される。

本審査委員会は本論文を学位論文として十分な内容を有しているものとして判断した。