東北大学 TOHOKU UNIVERSITY

Press Release

令和 2 年 8 月 31 日

報道機関　各位

東北大学多元物質科学研究所

室温動作ポラリトンレーザの実現に向けて大きな前進

–超低消費電力な近紫外線コヒーレント光源の実現に道–

【発表のポイント】

- 励起子および光子が比較的長い時間存在できる半導体微小共振器[注 1]を作製。
- 室温で共振器モードに結合した励起子ポラリトン[注 2]を観測。
- 反転分布[注 3]が不要な、超省電力コヒーレント光源への応用が期待。

【概要】

夢の超省電力光源として、励起子と光子の連成波（励起子ポラリトン）を微小共振器モードと結合させて用いる共振器ポラリトンレーザの実現が期待されています。東北大学多元物質科学研究所の嶋紘平助教、古澤健太郎助教（現 NICT 主任研究員）、秩父重英教授は、室温において励起子が安定して存在できる酸化亜鉛（ZnO）単結晶を活性層とするチップサイズの微小共振器を作製し、共振器ポラリトンを室温で観測することに成功しました。共振器ポラリトンは低濃度でも単一のエネルギー状態を占有するコヒーレンシーが高いため、ポラリトンレーザは従来の半導体レーザよりも大幅に低いキャリア[注 4]濃度でコヒーレント光を発する可能性があります。今回実証した、チップサイズの微小共振器による室温での共振器ポラリトン生成は、室温動作ポラリトンレーザの実現に向けた大きな前進です。

本研究の成果は 2020 年 8 月 19 日に、米国物理協会（AIP）の科学雑誌 Applied Physics Letters にてオンライン公開されました。

本研究の一部は、文部科学省「人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス」、科研費（22246037、17H06514、19K15453）、キヤノン財団の助成を受けています。

【問い合わせ先】
（研究に関すること）
東北大学多元物質科学研究所
担当：　教授　秩父重英
電話：　022-217-5363
E-mail：chichibu@tohoku.ac.jp

（報道に関すること）
東北大学多元物質科学研究所　広報情報室
電話：022-217-5198
E-mail：press.tagen@grp.tohoku.ac.jp

【詳細な説明】

１．背景

時間的・空間的コヒーレンシーの高いコンパクトな固体光源として半導体レーザが実用化され、照明・ディスプレイ・情報通信等に活用されています。最近では、演色性に優れる白色照明・高密度光情報記録素子・浄水デバイス等への応用に向け、窒化物半導体を用いた近紫外・深紫外半導体レーザの開発が進められています。しかし、半導体レーザの発振にはキャリアの反転分布が必要なため駆動時の閾値電流密度が数 kA/cm^2 程度であり極めて低いとは言えません。一方、ポラリトンレーザは半導体レーザとは動作原理が異なる超低閾値コヒーレント光源であり、省電力化を達成できる可能性があります。その動作原理は、共振器ポラリトンをボーズ・アインシュタイン凝縮[注5]させることに基づいており、発振にキャリアの反転分布を必要としません。

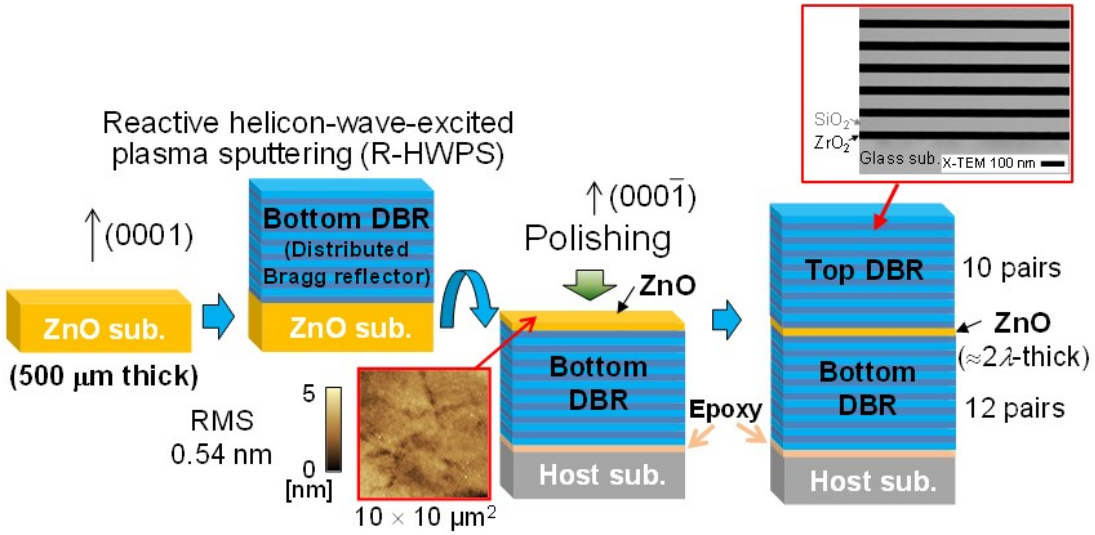
室温動作が可能なポラリトンレーザを実現するためには、励起子が室温で安定に存在できる半導体を用いる必要があります。ZnO の励起子束縛エネルギー[注6]は 59 meV と半導体の中でも最大級であり、室温の熱エネルギー（26 meV）よりも大幅に大きいです。また、酸化亜鉛の禁制帯幅[注7]は 3.37 eV（波長換算で 368 nm）であり近紫外線波長域で発光するため、高効率･高演色性白色光源への応用が期待されます。

ポラリトンレーザの基本構造である微小共振器は、光の波長程度の厚みの活性層が２枚の分布ブラッグ反射鏡[注8]（DBR）から成る合わせ鏡により挟まれています。通常は、サファイア等の自立基板上に半導体単結晶から成る底部 DBR、活性層、上部 DBR の順にボトムアップ方式で作製されます。ここで、励起子ポラリトンが安定に存在するためには、励起子寿命が長い活性層の形成と光子寿命が長い DBR の形成を両立させることが不可欠です。しかし、近紫外線波長域において高い反射率および広い反射帯域を有する DBR を実現できる低/高屈折率材料の組み合わせは限られており、その DBR 上に欠陥および不純物が少ない ZnO 活性層を単結晶成長させることは極めて困難です。その結果、室温における共振器ポラリトンの観測例は 2 μm 径の非常に局所的な領域に留まっており、チップサイズの広い面積において均一に観測できていませんでした。

２．研究手法と成果

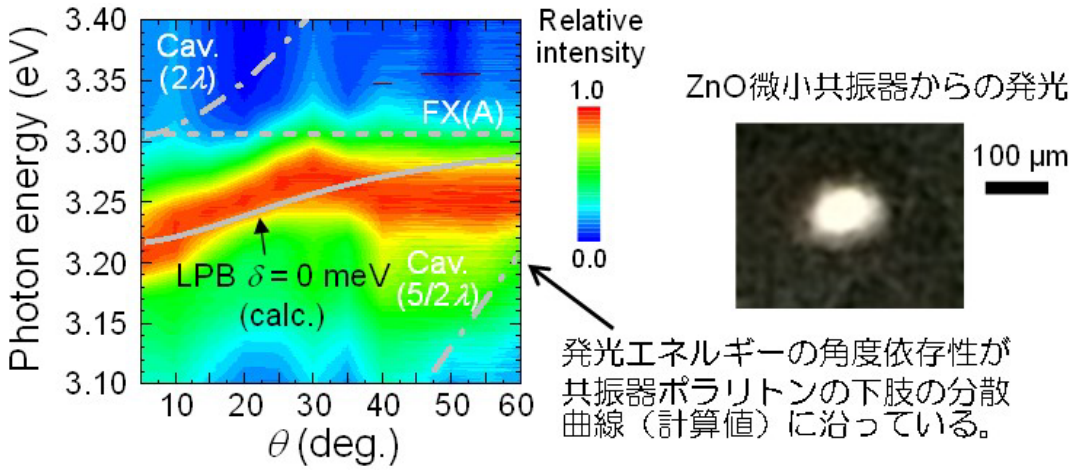
本研究では、チップサイズの ZnO 微小共振器の実現に向け、励起子が比較的長い時間存在できる高品質な ZnO 単結晶を光の波長程度の厚さまで薄くし、それを近紫外線の反射特性に優れる誘電体 DBR により挟みこむトップダウン方式プロセスを開発しました。活性層は、励起子の寿命を悪化させる非輻射再結合中心[注9]（貫通転位、空孔型欠陥、不純物等）の濃度が低い水熱合成[注10]ZnO 単結晶基板を研磨薄膜化することにより作製しました。DBR は、紫外線波長域で吸収損失が少ないシリカ（SiO_2）とジルコニア（ZrO_2）の組み合わせを採用

し、当グループ独自の製膜手法である、反応性ヘリコン波[注 11]励起プラズマスパッタ法（R-HWPS 法）により作製しました。R-HWPS 法では、通常のスパッタ法よりもイオンエネルギーが低いプラズマをリモートで生成し、スパッタに必要なイオンでターゲットを衝撃するため、製膜表面のプラズマダメージを減らすことができます。その結果、ZnO 活性層への欠陥誘起を抑えるとともに、平滑な界面を有する薄膜周期構造を実現でき、高い反射率と広い反射帯域を有する DBR を堆積できました。



【参考画像1】トップダウン方式による ZnO 微小共振器の作製方法。水熱合成 ZnO 単結晶基板の片面に、R-HWPS 法により誘電体 DBR を堆積します。次に、ZnO 単結晶基板を研磨により光の波長程度の厚みまで薄膜化します。さらに、研磨した面に誘電体 DBR を堆積させることにより ZnO 微小共振器を作製します。

作製した ZnO 微小共振器中に、室温において共振器ポラリトンが形成されているかを調べるため、角度分解フォトルミネッセンス[注 12]法（励起スポット径 80 μm、弱励起条件）により発光エネルギーの観測角度依存性を調べました。励起子ポラリトンが微小共振器モードに結合し共振器ポラリトンが形成された場合、発光エネルギーは角度依存性を呈します。計測の結果、ZnO 微小共振器の発光エネルギーは角度依存性を示し、そのエネルギー分散は計算により求められた共振器ポラリトンの下枝のエネルギー分散とよく一致しました。共振器ポラリトンが、励起直径 80 μm という比較的広い領域において観測されたこと、さらに微小共振器の面内（10×5 mm^2）の至る場所で観測されたことは世界初の成果であり、ZnO を活性層としたポラリトンレーザ実現に向けた大きな前進となりました。



【参考画像2】角度分解フォトルミネッセンスにより計測された、室温における ZnO 微小共振器の発光エネルギーの角度依存性（左図）。室温における ZnO 微小共振器からの発光の様子（右図）。

３．今後の展望

ポラリトンレーザ発振に向けて、室温における共振器ポラリトンのボーズ・アインシュタイン凝縮の実証を目指します。また、活性層を pn 接合内に形成し電流注入駆動を目指します。

【論文情報】

タイトル：Room-temperature cavity-polaritons in planar ZnO microcavities fabricated by a top-down process

著者：K. Shima, K. Furusawa, and S. F. Chichibu

掲載誌：Applied Physics Letters

DOI：10.1063/5.0011662

【用語説明】

注1．微小共振器

光の波長程度（数百ナノ～マイクロメートル）の厚さの活性層媒質が、2枚の合わせ鏡より挟まれた構造。光を閉じ込めるための構造。

注2．励起子ポラリトン

分極波である励起子（伝導電子と正孔の対がクーロン引力により束縛しあった量子）と電磁波である光子が近い振動数において結合した状態。励起子と光子が連成波となり準粒子として半導体中を伝搬する。

注3．反転分布

電子や粒子の、エネルギーの高い準位の状態密度が低い準位の状態密度を上回った分布状態。

注4．キャリア

物質中で電荷を運ぶ荷電粒子または準粒子。

注5．ボーズ・アインシュタイン凝縮

ボーズ統計に従う粒子が、ある１粒子状態（通常は最低エネルギー）を占め、その平均粒子数が総粒子数に対して同程度の巨視的な量になっている状態。物質の波動性が巨視的な規模で現れる。

注6．励起子束縛エネルギー

クーロン引力により束縛しあった伝導電子と正孔が束縛しあうエネルギー。自由な伝導電子と正孔に乖離させるために必要なエネルギーに相当。

注7．禁制帯幅

結晶のバンド構造において、定常状態の電子が占有することができないエネルギー帯のエネルギー幅。

注8．分布ブラッグ反射鏡

屈折率の異なる媒質を1/4波長の厚さで交互に積層させ、特定の波長帯域で高い反射率を得る鏡。

注9．非輻射再結合中心

半導体中でキャリアを捕獲し、励起状態にある電子を光子生成以外の形（熱生成）でエネルギー放出させて基底状態に遷移させる原因となる結晶欠陥ないしは不純物。

注10．水熱合成

通常の温度・圧力では溶解しない溶質を、高温・高圧の超臨界流体中に溶解させ、炉内の温度勾配に応じた溶解度差を利用して種結晶上に溶質を再結晶させるソルボサーマル法の一種。水熱合成法では溶媒として水を使用。

注11．ヘリコン波

外部磁場の下でプラズマ振動数以下の低周波数を有し、電子のサイクロトロン運動方向に沿って磁場と垂直方向に伝搬する右回りの円偏波。

注12．フォトルミネッセンス

半導体が禁制帯幅よりも大きなエネルギーの光を照射された際に、半導体内に励起された電子正孔対が再結合する過程で光が放出される現象。