

第3章 GaAs/AlAs 超格子のコヒーレント折返し縦音響フォノンに対する有限サイズ効果

3-1. はじめに

半導体超格子では、その作製の際に周期数を自由に变化させることができる。このことは、超格子という試料において、その系の有限性が制御可能であることを示している。系の有限性というものは、量子力学の基礎を成す不確定性原理と密接な関係がある。この関係によって引き起こされる現象は、一般に有限サイズ効果と呼ばれており、半導体超格子が示す興味深い現象の一つである。例えば、これまでも、超格子の周期数が減少するに従い、折返し縦音響(Folded longitudinal acoustic, FLA)フォノンのラマン散乱スペクトルの幅が広がるという現象が報告されている[32,33]。この現象は、超格子の有限性によって波数選択則の破綻が発現することに起因していると考えられている。

近年、半導体超格子中のコヒーレント FLA フォノンの測定が盛んに行なわれている[16,17,34-40]。この測定では、フォノンの振動数だけでなくその減衰時間を得ることができる。さらに反射型ポンプ・プローブ分光法を用いることにより、定在波としての特徴を有するゾーンセンターの FLA フォノンと有限の波数を有する伝播性の FLA フォノンとが同時に観測される[17,36,37]。超格子におけるゾーンセンターの FLA モードは、 A_1 あるいは B_2 という対称性が明確に反転するモードであるので、フォノンの対称性に対する有限サイズ効果を研究する上で好都合である。そこで本研究では、フォノンの対称性や減衰時間に対する有限サイズ効果を明らかにするという観点から、コヒーレント FLA フォノンに対する研究を行った[41]。そして有限系におけるコヒーレント FLA フォノンの示す特性が光生成キャリアの空間分布によって、どのように変化するか調べた。その結果、超格子全体を光励起するか表面層のみを光励起するかで、コヒーレント FLA フォノンの伝播過程を反映し、観測されるフォノンモードの特性が異なることを見出した。

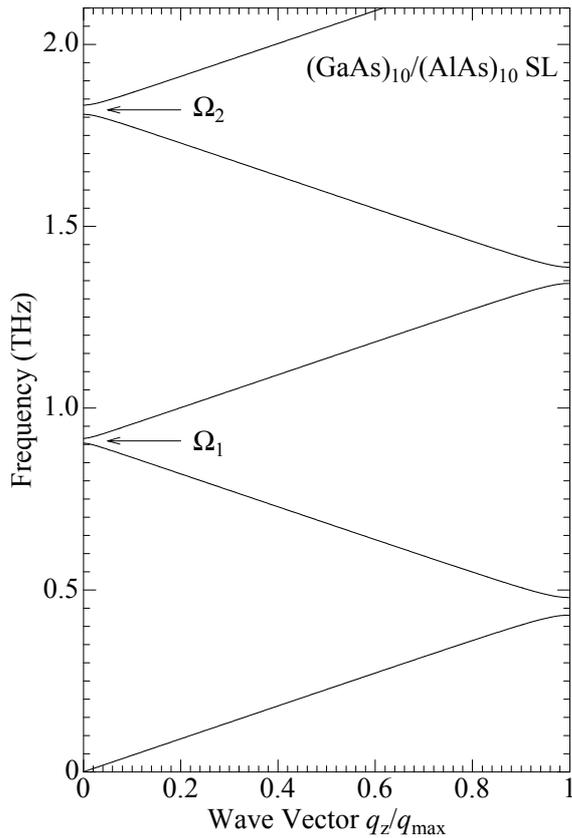


図 3-1. 式(3-1)を用いて計算された $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子における FLA フォノンの分散関係。 q_{max} と Ω_j は、それぞれゾーン端の波数の大きさ及び j 番目のゾーンセンターギャップの中心振動数を示す。

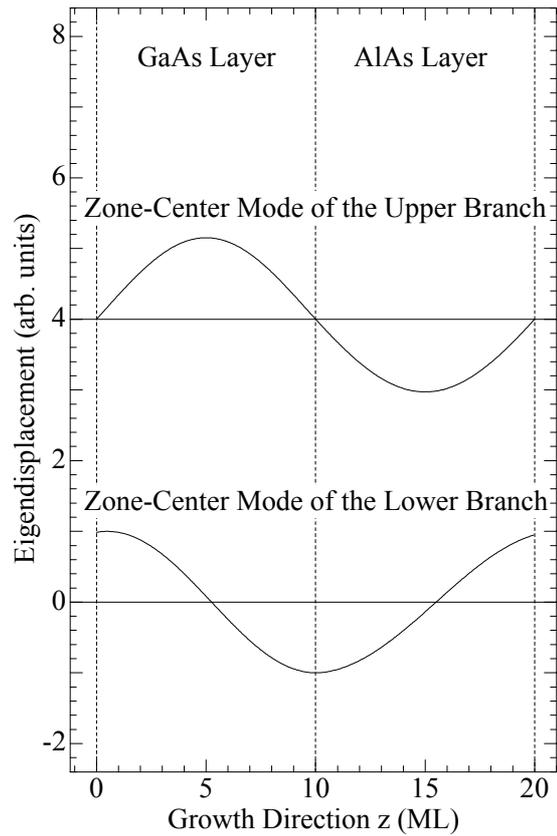


図 3-2. ゾーンセンターにおける第一 FLA フォノンの格子変位パターン。

3-2. GaAs/AlAs 超格子における折返し縦音響フォノン

3-2-1. 折返し縦音響フォノンとそのラマン散乱特性

本研究で用いた試料は、GaAs(001)基板上に MBE 法によって作成された周期数 n の異なる 3 種類の $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子である。ここで添字は、単原子層単位(monolayer, ML)での層厚(1 ML = 0.283 nm)を示している。実験に用いた 3 種類の $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子の周期数 n は、それぞれ 20, 100, 195 周期である。以後、これらの試料を n 周期超格子と呼ぶ。図 3-1 は、弾性体モデル[42]に基づいて計算された $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子における FLA フォノンの分散関係を示している。弾性体モデルによると、2 種類の異なる半導体 A, B の周期的構造からなる超格子における FLA フォノンの振動数 ω と波数 q_z との間には、次の関係式が成り立つ。

$$\cos(q_z D) = \cos \left[\omega \left(\frac{d_A}{v_A} + \frac{d_B}{v_B} \right) \right] - \frac{\varepsilon^2}{2} \sin \left(\frac{\omega d_A}{v_A} \right) \sin \left(\frac{\omega d_B}{v_B} \right) \left[\text{with } \varepsilon = \frac{\rho_B v_B - \rho_A v_A}{(\rho_B v_B \rho_A v_A)^{1/2}} \right] \quad (3-1).$$

ここで d_i , v_i , および ρ_i は、それぞれ各構成層の層厚、音速および密度である。FLA フォノンの分散関係の求める際には、 $v_{\text{GaAs}} = 4.731 \times 10^5$ (cm/s), $v_{\text{AlAs}} = 5.654 \times 10^5$ (cm/s), $\rho_{\text{GaAs}} = 5.318$ (g/cm³), $\rho_{\text{AlAs}} = 3.760$ (g/cm³) [43]として計算を行った。なお D は、超格子の周期($D=d_A+d_B$)である。図内の Ω_j は、FLA フォノンの分散曲線に現れるゾーンセンターギャップの中心振動数を示しており、近似的に次式で表される。

$$\Omega_j = \frac{2\pi v}{D} j \quad (3-2).$$

ここで j ($j=1,2,3,\dots$)は、FLA フォノンの折返しの次数を示している。一方 v は、超格子での平均音速を示しており、その値は次式で与えられる。

$$v = \frac{v_A v_B}{(1-\alpha)v_B + \alpha v_A} \quad \left[\text{with } \alpha = \frac{d_B}{d_A + d_B} \right] \quad (3-3).$$

第一 FLA フォノンの Ω_1 の値は、0.91 THz である。このことから観測されるゾーンセンター近傍の第一 FLA フォノンの周期は、約 1.1 ps であると予測される。

図 3-2 は、ゾーンセンターにおける第一 FLA フォノンの格子変位パターンを示している。 Ω_1 より高振動数側の上分枝ゾーンセンターモードの格子変位パターンは、GaAs 層または AlAs 層の中心に対して対称になっている。一方、 Ω_1 より低振動数側の下分枝ゾーンセンターモードの格子変位パターンは、各構成層の中心に対して反対称になっている。GaAs/AlAs 超格子は、正方晶(点群 D_{2d})に属する。そのため第一 FLA フォノンの場合、上分枝ゾーンセンターモードの対称性と下分枝ゾーンセンターモードの対称性は、それぞれ B_2 対称性および A_1 対称性である。

半導体超格子における FLA フォノンは、これまでラマン散乱分光法によって詳細に調べられている[3]。後方散乱配置の場合、上分枝と下分枝との両方から有限の波数を有するモードが観測される[44]。これらのモードの波数は、入射レーザー光の波数 k の 2 倍の値を有する。後方散乱配置における偏光ラマン散乱測定の結果は、これら波数 $2k$ のモードの対称性が A_1 対称性であることを示している[45,46]。また Sapriel ら[45]は、群論を用いてモードの対称性に関する理論解析を行い、 A_1 対称性と B_2 対称性との混成によって $2k$ モードが A_1 対称性を示すことを明らかにしている。一方、前方散乱配置の場合、ゾーンセンターの A_1 対称性のモードのみが検出されることが知られている[47,48]。このことから $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子に対し、前方散乱配置でラマン散乱測定を行うと、第一 FLA フォノンのうち、下分枝のゾーンセンターモードのみが検出されると予測される。

3-2-2. コヒーレント折返し縦音響フォノン

この項では、これまでのコヒーレント FLA フォノンの研究を振り返り、現在考えられている生成・検出メカニズムについて述べることにする。

コヒーレント FLA フォノンに対する最初の報告は、Yamamoto らによってなされた[16]。この報告は、波数 0 cm^{-1} 、すなわちゾーンセンターのモードに対するものであった。その後、さまざまなグループによる研究が進むにつれて、反射型ポンプ・プローブ分光法を行うと、第 j 番目の FLA フォノンのうち 3 本のモードが観測されることが分かってきた[17,36,37]。このうち 1 つは、ゾーンセンターの A_1 対称性のモードであるが、後の二つは、有限の波数($q_z \neq 0$)を有するモードである。Mizoguchi ら[17]は、ポンプ光とプローブ光とが同じ波長という条件で行なわれる通常の反射型ポンプ・プローブ分光法に加えて、プローブ光と異なる波長のポンプ光を用いた反射型 2 色ポンプ・プローブ分光法を行うことにより、観測される $q_z \neq 0$ モードがプローブ光の 2 倍の値の波数をもつことを明らかにした。これらの結果は、FLA フォノンのラマン散乱特性と類似している。このことからコヒーレント FLA フォノンの検出過程は、ラマン散乱選択則に従うと考えられている。反射型 2 色ポンプ・プローブ測定では、ポンプ光を照射することで、試料表面層に瞬時にキャリアが生成される。Mizoguchi らは、このキャリア生成によって表面層で発生したポテンシャル歪がフォノン波束を生成し、そのフォノン波束のうち、プローブ光に対してラマン散乱選択則を満たす FLA フォノンのみが検出されていると主張している。

3-3. 周期数の限られた GaAs/AlAs 超格子におけるコヒーレント折返し縦音響フォノン

3-3-1. 有限サイズ効果によって誘起されたモードの対称性と波数選択則の破れ

図 3-3 は、20 周期超格子および 195 周期超格子における時間分解反射率変化の時間微分信号を示している。この測定は、反射型ポンプ・プローブ分光法に対して時間遅延変調法を組み合わせで行なわれた。用いたレーザー光のパルス幅は、約 100 fs であった。レーザーパルス光の中心波長は、 $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子の Γ 点における第一電子・重い正孔ミニバンド間の

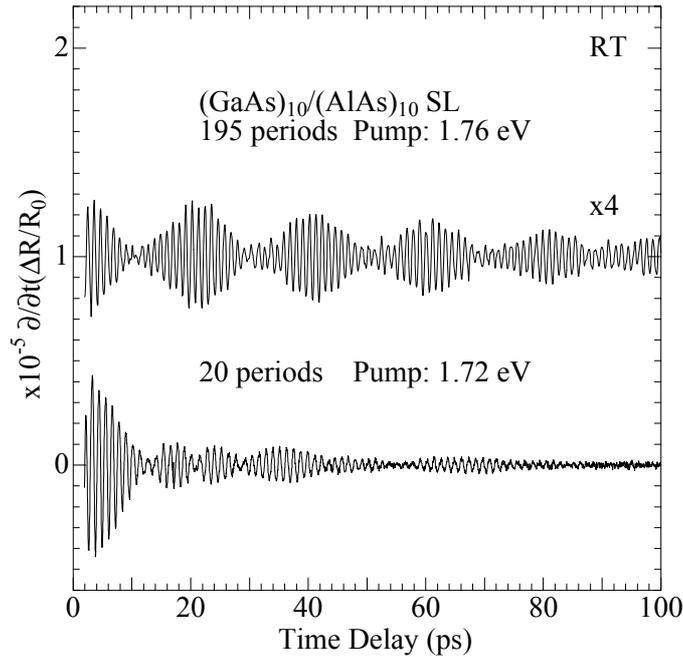


図 3-3. 室温における 195 周期超格子および 20 周期超格子の時間分解反射率変化の時間微分信号。

遷移エネルギーである 1.74 eV 近傍に合わせ、全ての測定は、室温下で行った。いずれの試料においても、1.1 ps 周期の振動構造が観測されている。この 1.1 ps という周期は、 $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ 超格子における第一 FLA フォノンの振動数に対応している。観測されている振動プロファイルの減衰時間は、次の第 4 章で取り上げるコヒーレント LO フォノンのものよりも遥かに長い。LO フォンは、超格子内で最も振動数の高いフォノンなので、より下の音響フォノン分枝にエネルギー緩和することができる。一方、FLA フォノンの場合、それより下にある分枝は、音波のモードだけである。このことから第一 FLA フォノンは、LO フォノンに比べてエネルギー緩和しにくいと考えられる。そのため、FLA フォノンの減衰時間が LO フォノンの減衰時間より長くなったのではないかと考えられる。図 3-3 が示すように FLA フォノンの減衰時間は、試料の周期数に大きく依存している。195 周期超格子における振動プロファイルは、100 ps を超える時間領域においても観測されるが、20 周期超格子における振動プロファイルは、急激に減衰し 80 ps でほぼ消失している。このことは、超格子の周期数の違いが振動プロファイルの減衰時間に何らかの影響を与えていることを示唆している。この FLA フォノンの減衰時間に関しては、フォノンの伝播性などを含めたさまざまな観点から、後ほど詳細な議論を行う。

図 3-3 ではいずれの試料においても、その振動プロファイルにうなりが観測されている。このことは、複数のモードが検出されていることを示している。そこで、どのようなモードが検出されたかを調べるために、まずこれらの時間領域信号をフーリエ変換した。図 3-4 は、

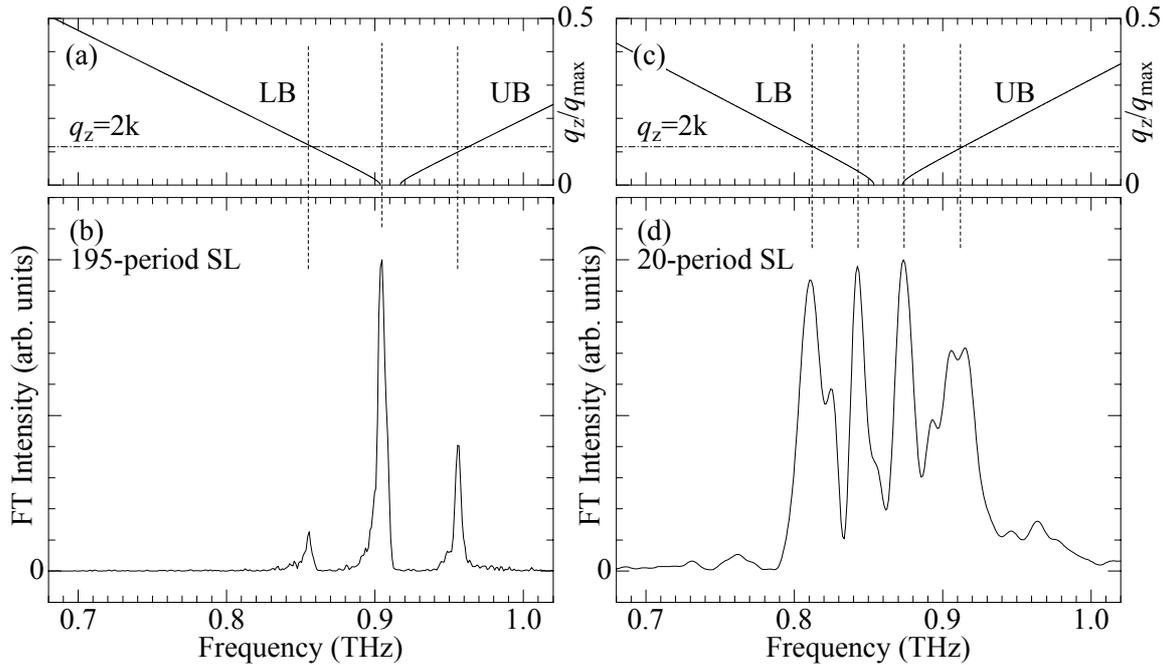


図 3-4. (a), (c) 式(3-1)を用いて計算された第一 FLA フォノンの分散曲線。(b), (d) 195 周期超格子および 20 周期超格子における図 3-3 の時間領域信号のフーリエ変換スペクトル。

その結果である。195 周期超格子では、3 つのピークがそれぞれ振動数 0.86, 0.90, 0.96 THz で観測されている。一方 20 周期超格子では、4 つのピークがそれぞれ振動数 0.81, 0.84, 0.87, 0.91 THz で観測されている。なお、それぞれの試料において観測されたピークの振動数の平均値、すなわち FLA フォノンの分散曲線におけるゾーンセンターギャップの中心振動数は、異なる値を示す。式(3-2)が示すように、その中心振動数は超格子の周期 D に依存する。それゆえ、ギャップの中心振動数が試料ごとに異なるということは、超格子を構成する各層の原子層数に揺らぎがあることを示唆している。これら観測されたモードの帰属を行うため、式(3-1)を用いて計算された第一 FLA フォノンの分散曲線との比較を行った。なお先に述べた原子層数の揺らぎを考慮して、各分散曲線は、各層の原子層数を 195 周期超格子の場合、 $(\text{GaAs})_{10}/(\text{AlAs})_{10}$ として、20 周期超格子の場合、 $(\text{GaAs})_{11}/(\text{AlAs})_{10}$ として計算されている。この分散曲線と比較した結果、195 周期超格子における振動数 0.90 THz のモードは、下分枝のゾーンセンターモード、振動数 0.86 THz と 0.96 THz のモードは、それぞれプローブ光の波数 k の 2 倍の波数を有する上分枝および下分枝の $2k$ モードであることが分かった。一方、20 周期超格子では、振動数 0.81 THz と 0.91 THz のモードが $2k$ モード、0.84 THz のモードが下分枝ゾーンセンターモードで、0.87 THz のモードが上分枝ゾーンセンターモードであることが分かった。下分枝のゾーンセンターモードは、図 3-2 が示すように A_1 対称性を示すので、モードの対称性に対するラマン散乱選択則[48]と何ら矛盾はしていない。ところが 20 周期超

格子において、上分枝ゾーンセンターモードが観測されたことは興味深い。なぜならこのモードは、図 3-2 が示すように B_2 対称性を有するので、ラマン散乱選択則に基づけば、本来禁制となるモードだからである。そのため 20 周期超格子において上分枝ゾーンセンターモードが観測されたことは、系の有限性によるラマン散乱選択則の破綻、すなわち対称性の破れが生じたためであると考えられる。20 周期超格子において上分枝ゾーンセンターモードの対称性が破れているならば、同様に下分枝ゾーンセンターモードについてもその対称性も破れていると考えられる。こうした対称性の破れが A_1 対称性と B_2 対称性との混成を生じさせていると仮定すれば、この二つのモードの強度がほぼ等しくなっていることに対して定性的には理解できる。

次に、観測されたモードのスペクトル幅について考察する。図 3-4 に示したように、20 周期超格子における各モードのスペクトル幅は、195 周期試料のそれらより広がっている。さらに 20 周期超格子における $2k$ モードのスペクトル幅は、ゾーンセンターのものより大きな値を示している。こうしたスペクトル幅のブロードニングの原因として、次の二つが考えられる。まず一つは、ゾーンセンターモードと $2k$ モードとの間での伝播特性の違いである。図 3-1 が示すように、 $q_z \neq 0$ での分散曲線の傾き、すなわちフォノンの群速度は有限の値を有する。このことは、 $2k$ モードが伝播性のモードであることを示している。それゆえ、 $2k$ モードは、超格子層から基板側に抜けていくことができると考えられる。一方、 $q_z = 0$ では分散曲線の傾きが消失している。このことは、ゾーンセンターモードが定在波であることを示している。それゆえ、ゾーンセンターモードは、いつまでも超格子層内にとどまると予測される。このような $2k$ モードとゾーンセンターモードとの間での伝播特性の違いが、それらの減衰時間に差を生じさせ、これがフーリエ変換スペクトルの幅の差の起因となったと考えられる。図 3-5(a)は、20 周期超格子の振動プロファイルに対する時間窓[30 ps, 100 ps]の時間分割フーリエ変換スペクトルである。ゾーンセンターモードに比べて $2k$ モードの減衰率は、圧倒的に大きい。このことは先に述べた考察を支持するものである。図 3-5(b)は、195 周期超格子の振動プロファイルに対して、20 周期超格子の場合と同じように、時間分割フーリエ変換を行った結果である。このスペクトルが示すように、 $2k$ モードとゾーンセンターモードとの減衰率の間にそれほど大きな差はない。これは、195 周期超格子ではその超格子層の厚さが大きいため、 $2k$ モードが超格子層内から抜け出ていく影響がそれほど効かないためであると考えられる。このように $2k$ モードが超格子層内に残存しつづけることが、195 周期超格子の振動プロファイルの長い減衰時間につながる一つの原因ではないかと考えられる。

もう一つフーリエ変換スペクトル幅を広げる要因として考えられるのが、有限サイズ効果によって引き起こされる波数選択則の破綻である。この波数選択則の破綻の度合いは、超格

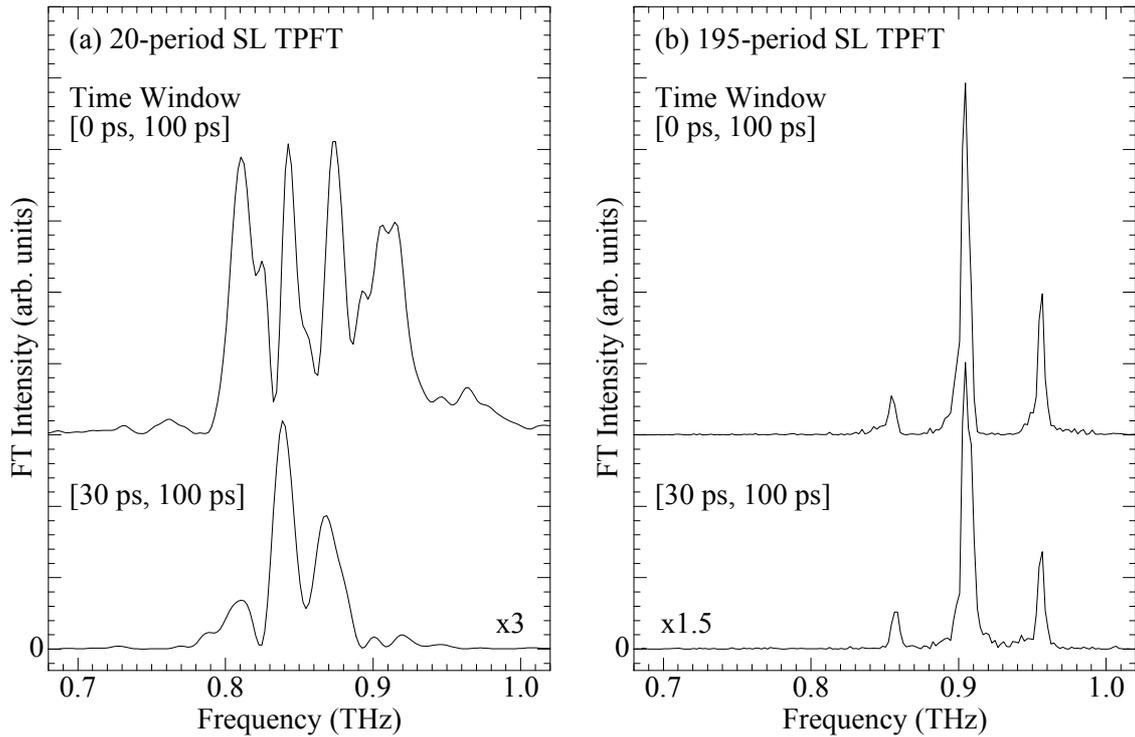


図 3-5. 20 周期超格子(a)および 195 周期超格子(b)における時間分割フーリエ変換スペクトル。

子の周期数が減少するに伴い大きくなる。4-1 節で述べたように、波数選択則の破れの増大とともにラマン散乱分光法で観測される FLA フォノンのスペクトル幅が広がることは、既に報告されている[32,33]。20 周期超格子のスペクトル幅が 195 周期のものより広がっていることは、こうした報告と一致している。図 3-6 は、図 3-1 の分散関係のうち、第一 FLA フォノンのゾーンセンター近傍での形状を示している。図内の Δq は、波数選択則の破綻によって検出されるモードの波数領域を示している。波数選択則の破綻が起こると、検出されるモードの振動数領域 $\Delta\omega$ は、FLA フォノンの分散曲線の傾きに従って決定される。波数 $2k$ 近傍での分散曲線は、波数の 1 次関数で近似できるため、 $2k$ モードの場合、そのフーリエ変換スペクトル幅は分散曲線の傾きを反映して広くなる。一方、ゾーンセンターモードの場合、分散曲線が示すようにギャップが存在するため、スペクトル幅が制限される。このためゾーンセンターモードのスペクトル幅の広がり $\Delta\omega$ が $2k$ モードのそれより狭くなると考えられる。20 周期超格子の場合、 $2k$ モードの半値幅とゾーンセンターモードの半値幅は、それぞれ 26.1 ± 2.0 (GHz) および 11.5 ± 2.0 (GHz) である。これは、 $2k$ モードとゾーンセンターモードとの間での波数選択則の破綻によるスペクトルの幅の違いが、分散曲線の形状を反映しているということをサポートするものである。

このスペクトルの幅と波数選択則の破れとの関係を定量的に扱うために、フォノンのラマン散乱特性に対する有限サイズ効果を説明するために用いられる理論[32,49,50]を適用し、こ

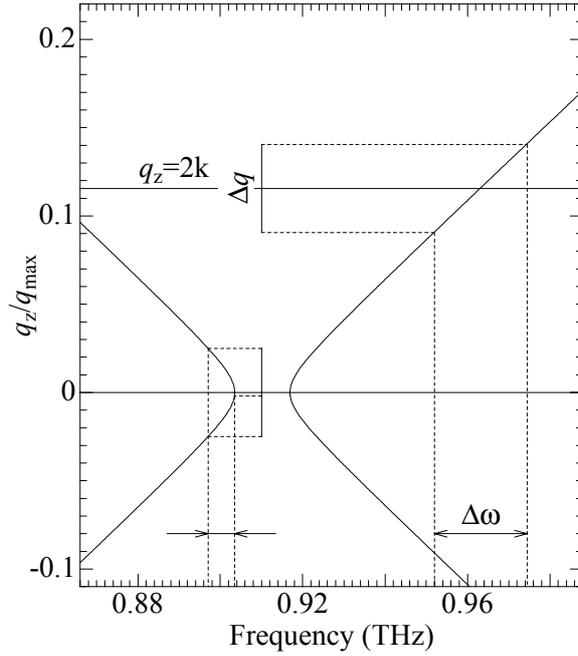


図 3-6. (GaAs)₁₀/(AlAs)₁₀ 超格子中の第一 FLA フォノンのゾーンセンター近傍における分散曲線。図内の Δq と $\Delta\omega$ は、それぞれ波数選択則によって検出されるモードの波数領域とそれに対応する振動数領域を示している。

の理論と実験結果との比較を行った。この理論に基づけば、1 周期の長さが D である n 周期超格子における波数 q_{z0} , 振動数 $\omega(q_{z0})$ の FLA フォノンによるラマン散乱スペクトル $I(\omega)$ は、次式で表される。

$$I(\omega) = \int_0^{\pi/D} \exp\left(-\frac{(q_z - q_{z0})^2}{\Delta q^2}\right) \frac{1}{[\omega - \omega(q_z)]^2 + (\Gamma_0/2)^2} dq_z \quad [\text{with } \Delta q = 2/nD] \quad (3-4).$$

ここで Γ_0 は、振動数 $\omega(q_{z0})$ のフォノンの寿命を示しており、無限周期超格子のラマン散乱スペクトル幅に対応するものである。積分の中に現れているガウス関数は、波数選択則の破れを現象論的に表現するものである。そして波数選択則の破綻の度合いは、 Δq すなわち超格子の層厚の逆数で示されると仮定した。超格子の周期 n が増すと Δq は小さくなるので、式(3-4)のガウス関数はデルタ関数に近づき、 $I(\omega)$ は無限周期超格子におけるローレンツ型のラマン散乱スペクトル形状、

$$I(\omega) \propto \frac{1}{[\omega - \omega(q_{z0})]^2 + (\Gamma_0/2)^2} \quad (3-5).$$

を示す。図 3-7 は、ゾーンセンターモードおよび $2k$ モードのフーリエ変換スペクトルの半値幅をプロットしたものである。白丸は $2k$ モードの半値幅を、黒丸はゾーンセンターモードの半値幅を示している。実線と破線は、 $2k$ モードおよびゾーンセンターモードに対して半値幅

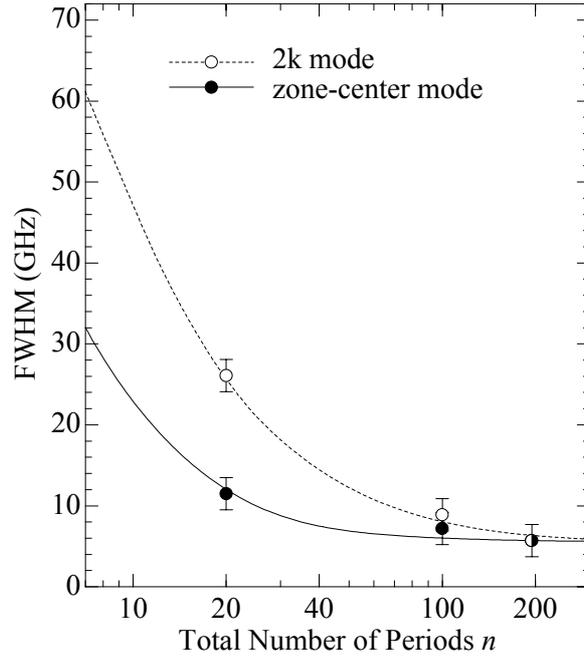


図 3-7. 超格子の周期数 n の関数としてプロットされた FLA フォノンのフーリエ変換スペクトルの半値幅。白丸と黒丸は、それぞれ 2k モードおよび下分枝ゾーンセンターモードの半値幅を示す。破線と実線は、それぞれ式(3-4)に基づいて計算された 2k モードおよび下分枝ゾーンセンターモードの半値幅を示す。

Γ_0 をフィッティングパラメータとし、式(3-4)を計算することにより得られたスペクトルの半値幅を示している。 $\Gamma_0 = 4.5$ GHz の場合に、この計算結果と実験結果とはよい一致を示す。このことは超格子における周期数の有限性が、コヒーレント FLA フォノンの検出過程における波数選択則の破綻をもたらし、その結果フーリエ変換スペクトルの半値幅が広がることを示している。

次に、この波数選択則の破綻と系の有限性によるフォノンの対称性に関するラマン散乱選択則の破綻との間について議論する。ここでは、FLA フォノンのラマン散乱強度を説明するために通常よく用いられている光弾性モデル[33,46,48]がコヒーレント FLA フォノンの検出過程にも適用できるものと仮定して考察を行う。光弾性モデルとは、音響フォノンによる歪が感受率を変化させるというモデルである。このモデルに基づくと、波数 q_z 、振動数 $\omega(q_z)$ の FLA フォノンによるラマン散乱スペクトル $I(\omega)$ は、次式で与えられる[33,48]。

$$I(\omega) = \frac{n(\omega) + 1}{\omega} \frac{(\Gamma_0 / 2)}{[\omega - \omega(q_z)]^2 + (\Gamma_0 / 2)^2} \left| \sum_{i=1}^N P(z_i) \frac{\partial U(z_i)}{\partial z} \exp(iq_z z_i) \right|^2 \quad (3-6).$$

ここで $n(\omega)$ と Γ_0 は、それぞれボーズ因子および現象論的な減衰定数を示している。また $P(z_i)$ と $U(z_i)$ は、超格子の積層方向に沿った原子の位置 z_i における光弾性定数および格子変位を表

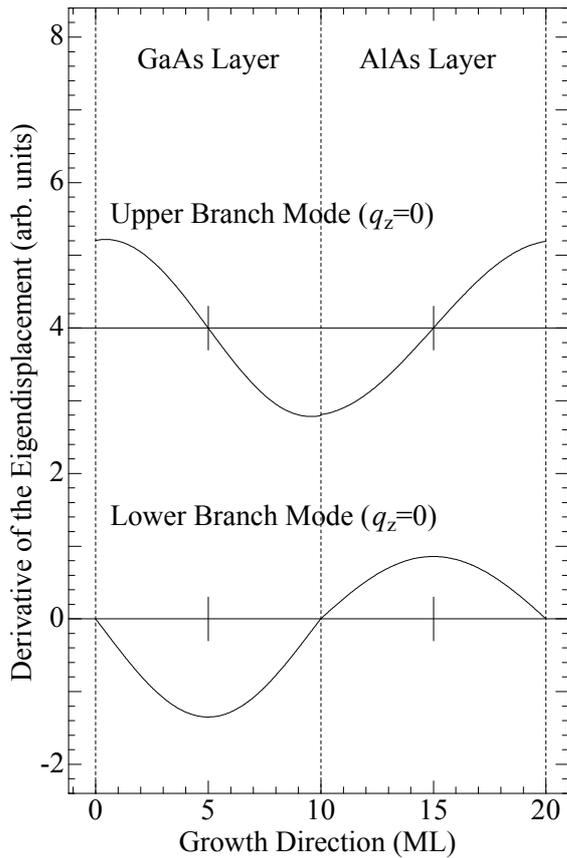


図 3-8. 上分枝および下分枝ゾーンセンターモードの格子変位の微分。

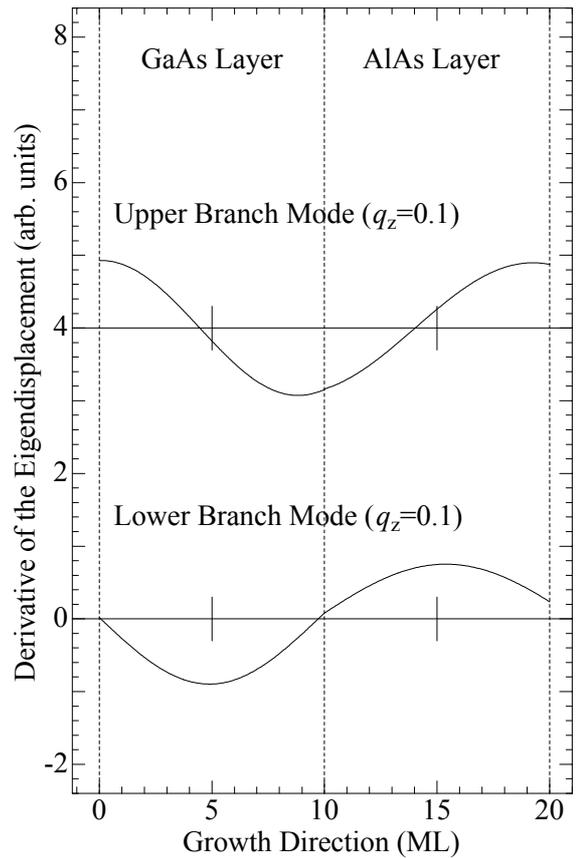


図 3-9. $q_z=0.1$ における上分枝および下分枝ゾーンセンターモードの格子変位の微分(実部)。

している。ここでは、コヒーレント FLA フォノンのフーリエ変換スペクトルも式(3-6)に従うと仮定する。簡単のため、まず最初 $q_z=0$ のモード、すなわちゾーンセンターモードの場合について考えてみる。このとき式(3-6)の和の部分は、

$$\left| \sum_{k=1}^N P(z_i) \frac{\partial U(z_i)}{\partial z} \right|^2 \quad (3-7).$$

で表される。下分枝および上分枝のゾーンセンターモードの格子変位の z に関する微分を図 3-8 に示す。下分枝ゾーンセンターモードの格子変位の微分は、GaAs 層および AlAs 層の中心に対して対称になっている。しかも GaAs と AlAs との間での光弾性定数の比は異なる (例えば、エネルギー 2.41 eV の光で GaAs の光弾性定数と AlAs の光弾性定数の比は 10:1) ので、式(3-7)の和は 0 にならない。一方、上分枝モードの格子変位の微分は、各層の中心に対して反対称性を示すので、式(3-7)の和が 0 になってしまう。そのため、無限周期超格子における上分枝モードは、検出できないと考えられる。次に $q_z \neq 0$ の場合を考えてみる。図 3-9 は、 $q_z=0.1$ における上分枝および下分枝モードの格子変位の微分を示している。この図では、上分枝モ

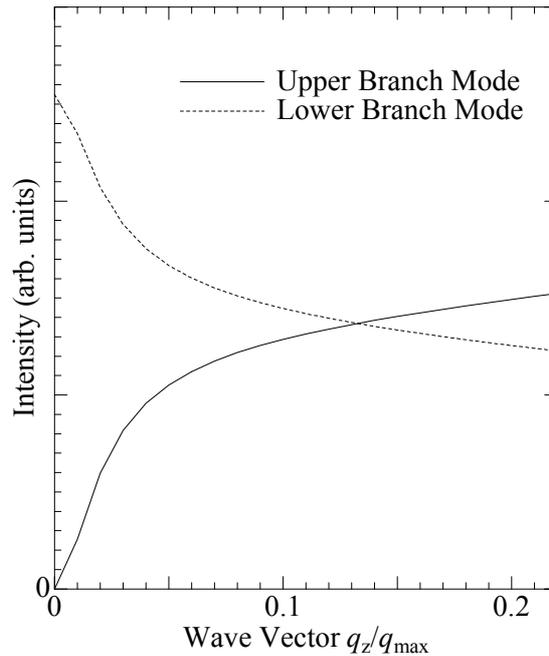


図 3-10. 式(3-6)を用いて計算された第一 FLA フォノンのラマン散乱強度。実線と破線は、それぞれ上分枝および下分枝モードのラマン散乱強度を示す。

ードの格子変位の微分が $q_z=0$ の場合に示していた反対称性は崩れている。そのため、式(3-6)の和の項は、0 でなくなる。また下分枝モードの格子変位の微分が $q_z=0$ の場合に示していた対称性は崩れているので、式(3-6)の和の項は、 $q_z=0$ の場合に比べて小さくなると考えられる。図 3-10 は、式(3-6)を計算することによって得られた第一 FLA フォノンの下分枝および上分枝モードのラマン散乱強度の波数依存性を示している。 $q_z=0$ から波数が増加するに従い、上分枝のモードの強度は増強されるが、下分枝のモードの強度は減少していく。このことは、 $q_z \neq 0$ において A_1 対称性と B_2 対称性とが混成していることを示している。図 3-7 が示すように 20 周期超格子では、非常に大きな波数選択則の破れが発現している。このことによって、前述の A_1 対称性と B_2 対称性との混成が増強され、上分枝のゾーンセンターモードの検出につながったと考えられる。一方、195 周期超格子の場合、波数選択則が成り立っているので、 A_1 対称性と B_2 対称性との混成がほとんど起こらず、ゾーンセンターモードのうち下分枝のモードだけが検出されたのではないかと考えられる。

3-3-2. ゾーンセンターモードの自由誘導減衰過程

図 3-4 が示すように、20 周期超格子におけるゾーンセンター FLA フォノンのスペクトル幅

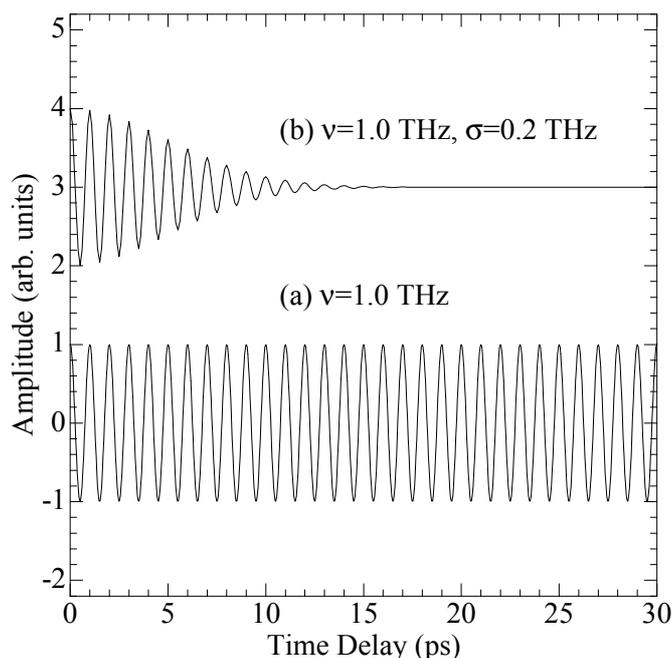


図 3-11. 自由誘導減衰の概念図。(a) 全てが同じ共鳴振動数 ν を有する電気双極子集団からの信号。
 (b) 式(3-8)を用いて計算された共鳴振動数に σ の分布が存在する電気双極子集団からの信号。

は、195 周期のものに比べて広がっている。こうしたスペクトル幅の広がり、時間領域信号の自由誘導減衰を引き起こすと予測される。この自由誘導減衰について説明する。ある電気双極子の集団が存在し、その集団に属する個々の双極子が全て ω の振動数で、全く減衰することなく運動を行うことができると仮定する。こうした系にパルス的な力が加わり、双極子の集団が一斉に応答し振動を開始すると、その双極子集団から発生する電磁波は、減衰することなく図 3-11(a)に示されているように正弦波的な振る舞いを示す。次に、それぞれの双極子の振動数に分布がある場合、例えばそれぞれの振動数がガウス分布を示すような場合の双極子集団のパルス応答を考えてみる。こうした集団からの信号 $I(t)$ は、それぞれの双極子から発生する電磁波の和となるので、次式で表すことができる。

$$I(t) \propto \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{\sigma^2}\right) \sin(\omega t) d\omega \quad (3-8).$$

図 3-11(b)は、式(3-8)に基づいて計算された双極子集団からの電磁波の時間発展を示している。個々の双極子の運動は減衰しないとしているのにも関わらず、全体から発生する電磁波の和は、時間発展とともに減衰していく。これは、個々の双極子から発生した電磁波の位相が、時間発展とともに少しずつずれていくことにより、それぞれの電磁波がお互いに打ち消し合うように干渉することに起因する。こうした減衰過程が自由誘導減衰と呼ばれるものである。自由誘導減衰は、核磁気共鳴などにおいても広く知られている現象であり[51]、多体系からの

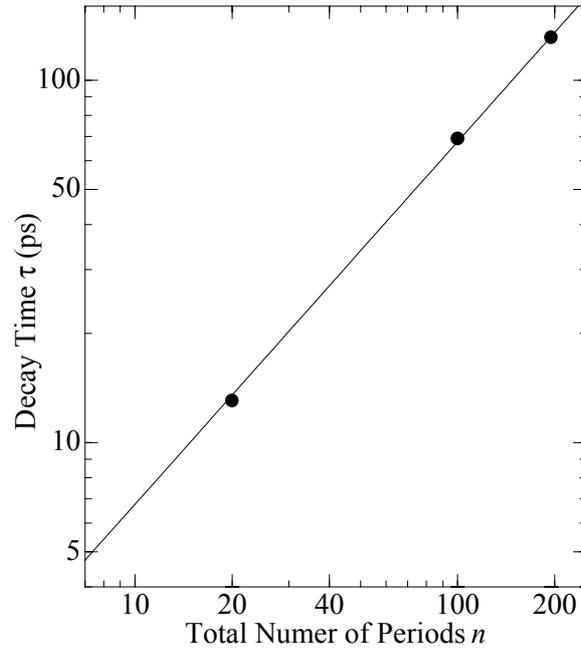


図 3-12. 時間分割フーリエ変換によって得られた第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモードの減衰時間。黒丸は実験値を示している。

信号が示す典型的な特性の一つである。先にも述べたように、反射型ポンプ・プローブ分光法で観測された 20 周期超格子におけるコヒーレント FLA フォノンのフーリエ変換スペクトルは、有限の幅を示している。スペクトルが有限の幅を示すということは、広い振動数領域にわたって複数のモードが検出されていることを意味している。このことから、本実験で検出されているコヒーレント FLA フォノンの時間領域信号は、複数のモードからの時間分解反射率変化が重ね合わさることによって構成されていると考えられる。図 3-3 に示されているように、20 周期超格子の時間領域信号は、195 周期の信号に比べて急激に減衰している。20 周期超格子と 195 周期超格子との時間領域信号を時間分割フーリエ変換して、下分枝ゾーンセンターモードのフーリエ変換スペクトルのピーク強度を遅延時間に対してプロットし、その減衰時間を見積もった。それぞれの超格子における下分枝ゾーンセンターモードの減衰時間を周期 n の関数としてプロットしたのが図 3-12 である。20 周期超格子および 195 周期超格子における下分枝ゾーンセンターモードの減衰時間は、それぞれ 13 ps, 130 ps であった。前にも述べたように、20 周期超格子のゾーンセンター FLA フォノンのフーリエ変換スペクトルは、波数選択則の破綻によって、195 周期超格子のものに比べて広がっている。そのため、その時間分解反射率変化には、195 周期超格子の場合に比べて、より多くのモードが寄与していると考えられる。そのため、ゾーンセンターモードの減衰時間がより短くなったと考えられる。

次に、ゾーンセンターモードの減衰時間と波数選択則の破れとの関係を定量的に評価する。

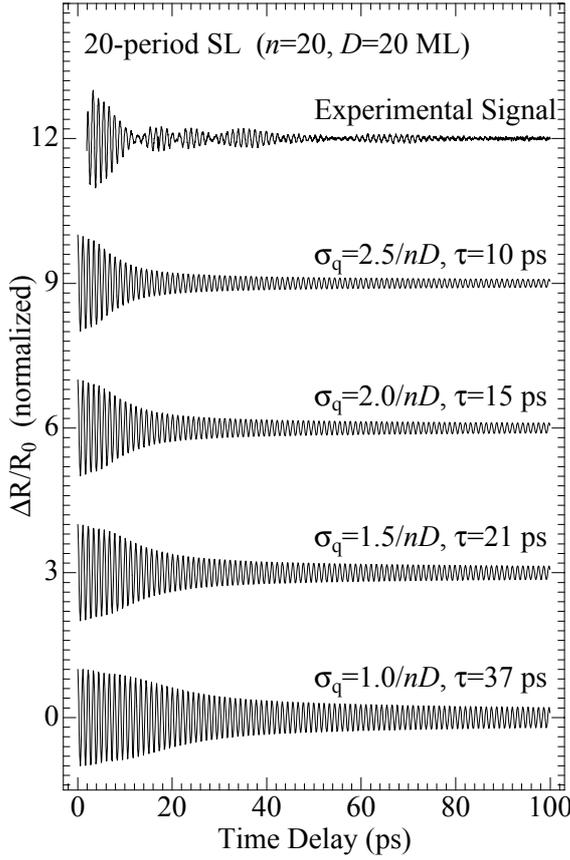


図 3-13. 式(3-9)を用いて計算された、20 周期超格子における第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモードの時間分解反射率変化。

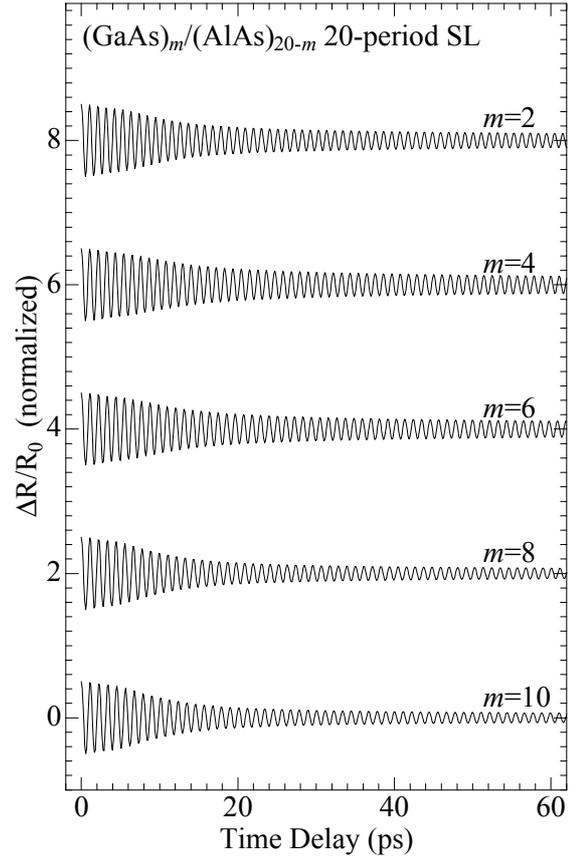


図 3-14. 式(3-9)を用いて計算された、 $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_{20-m}$ 20 周期超格子における第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモードの時間分解反射率変化。

1 周期の長さが D である n 周期超格子において波数選択則の破綻により、ある振動数領域に属する複数の FLA モードが検出されると仮定する。すると、検出される時間分解反射率変化は、次式で表すことができる。

$$\frac{\Delta R(t)}{R_0} \propto \int_0^{\pi/D} \exp\left(-\frac{(q_z - q_{z0})^2}{\sigma_q^2}\right) \cdot \cos[\omega(q_z)t + \phi_0] dq_z \quad (3-9).$$

ここで ϕ_0 は、コヒーレント FLA フォノンの初期位相であり、モードによらず一定の値を取るものとした。積分項の中に現れているガウス関数は、波数選択則の破綻を現象論的に表現するものである。 σ_q は、波数選択則の破れの度合いを示す量であり、超格子層の層厚 nD と次の関係にあると仮定した。

$$\sigma_q = \beta / nD \quad (3-10).$$

ここで β は、任意の比例定数である。

図 3-13 は、式(3-9)を用い σ_q をパラメータとして計算された 20 周期超格子における第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモードによる時間分解反射率変化である。 σ_q の値を大きく

すると、振動プロファイルの減衰時間は短くなる。このことは、波数選択則の破綻が時間分解反射率変化の自由誘導減衰を引き起こすことを明確に示している。一般に、式(3-9)を用いて計算された振動プロファイルは、指数関数的な減衰を示さない。そこで振幅が初期振幅の $1/e$ になる時刻を減衰時間と定め、その値を求めた。図内に示された τ は、そのようにして求められた減衰時間であり、 $\sigma_q = 2.0/nD$ の場合、15 ps となる。この値は、実験で得られたゾーンセンターモードの減衰時間 13 ps とほぼ同じである。当然のことながら、FLA フォノンの線幅を解析するために用いた式(3-4)とゾーンセンターモードの自由誘導減衰を評価するために用いた式(3-9)とは、お互いにフーリエ変換で結び付けられていなければならない。 $\sigma_q = 2.0/nD$ の場合、 σ_q は式(3-4)の Δq と等しくなる。この場合、式(3-9)は、 Γ_0 の項を除けば、FLA フォノンの線幅を評価するのに用いた式(3-4)とフーリエ変換の関係にある。それゆえ、式(3-9)で $\sigma_q = 2.0/nD$ としてゾーンセンターモードの減衰時間を評価することは、妥当であると考えられる。

式(3-9)が示すように、超格子層の有限性に起因する波数選択則の破綻は、式(3-1)で与えられる分散関係を通して、信号に現れる。FLA フォノンの分散関係は、GaAs 層と AlAs 層との間の原子層数の比を変えることによって、特にゾーンセンター近傍での振る舞いに変化する。このことから、ゾーンセンターモードによる時間分解反射率変化の振動プロファイルは、超格子の周期数だけでなく、構成層の原子層数比をも反映するであろうと予測される。この考えを確かめるため、式(3-9)を用いてシミュレーションを行った。図 3-14 は、20 周期 $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_{20-m}$ 超格子における第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモードの振動プロファイルを、GaAs 層の原子層数 m をパラメータとしてプロットしたものである。なおこの振動プロファイルは、全て $\sigma_q = 2.0/nD (n=20, D=20 \text{ ML})$ として計算されたものである。超格子の周期数が一定であるにも関わらず、FLA フォノンの振動プロファイルは、GaAs 層の原子層数とともに変化していく。図 3-15(a)は、振動プロファイルの減衰時間を GaAs 層の原子層数の関数 m としてプロットしたものである。ここでも減衰時間は、振幅が初期振幅の $1/e$ になる時刻と定めた。振動プロファイルの減衰時間と FLA フォノンの分散曲線との関係を調べるために、図 3-15(a)には、FLA フォノンの分散曲線の重要な因子の一つであるゾーンセンターギャップの大きさを合わせて示した。第一 FLA フォノンのゾーンセンターにおけるギャップの大きさ $\Delta\Omega_1$ は、式(3-1)で定義された ε を用いることにより次式で近似的に与えられる[47]。

$$\Delta\Omega_1 \approx \frac{2\varepsilon v}{D} \sin \left[\pi \frac{(1-\alpha)v_B - \alpha v_A}{(1-\alpha)v_B + \alpha v_A} \right] \quad \left[\text{with } \alpha = \frac{d_B}{d_A + d_B} \right] \quad (3-11).$$

図 3-15(a)が示すように、ゾーンセンターモードの減衰時間は、ゾーンセンターギャップが減少するに従い短くなり、 $m=9$ で最小となる。ゾーンセンターギャップの大きさと FLA フォノ

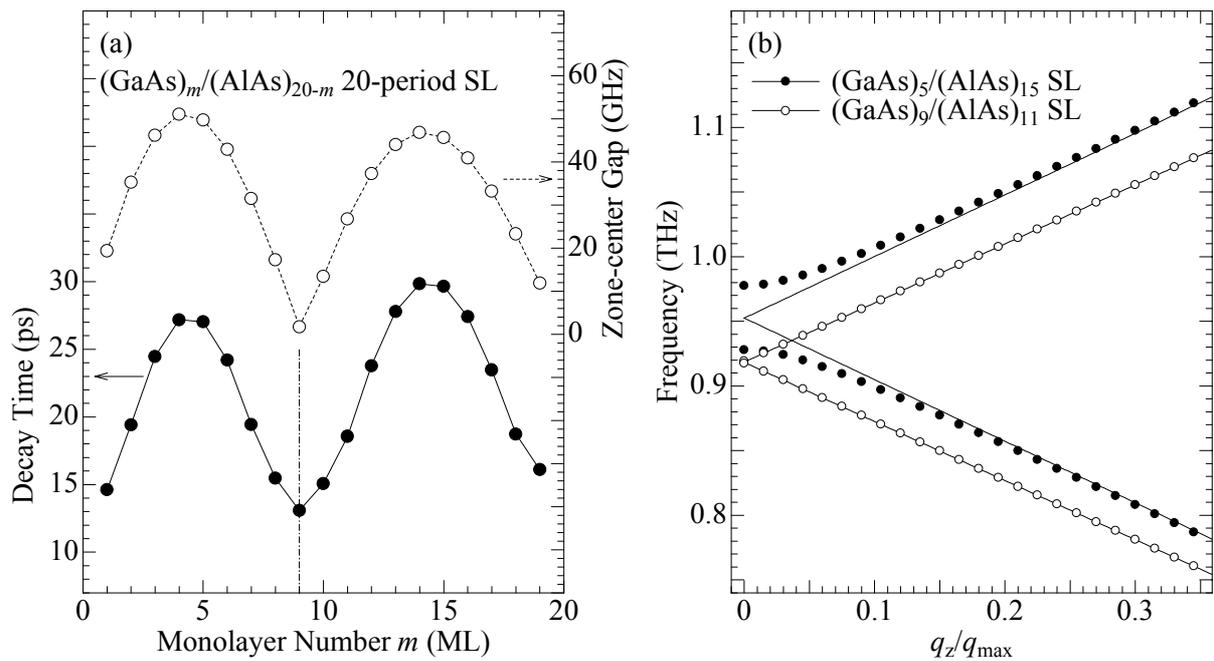


図 3-15. (a) $(\text{GaAs})_m/(\text{AlAs})_{20-m}$ 20 周期超格子における第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモードの振動プロファイルの減衰時間(黒丸)および式(3-11)を用いて計算された $\Delta\Omega_1$ (白丸)。 (b)式(3-1)を用いて計算された $(\text{GaAs})_5/(\text{AlAs})_{15}$ 超格子(黒丸)および $(\text{GaAs})_9/(\text{AlAs})_{11}$ 超格子(白丸)における第一 FLA フォノンの Γ 点近傍での分散曲線。

ンの分散曲線との関係を明らかにするため、式(3-1)を用いて計算された $(\text{GaAs})_5/(\text{AlAs})_{15}$ 超格子および $(\text{GaAs})_9/(\text{AlAs})_{11}$ 超格子における第一 FLA フォノンのゾーンセンター近傍での分散曲線を図 3-15(b)に示す。ゾーンセンターギャップがほぼ消失している $(\text{GaAs})_9/(\text{AlAs})_{11}$ 超格子での分散曲線は、ゾーンセンター近傍であっても、波数の 1 次関数(実線)で表すことができる。それゆえ、ゾーンセンターギャップが消失するという事は、FLA フォノンの分散曲線を波数の 1 次関数で近似できることにつながると考えられる。ゾーンセンター近傍での FLA フォノンの分散曲線の形状が 1 次関数に近づけば近づくほど、分散曲線の傾きは大きくなる。そのため、より広い振動数領域のモードが自由誘導減衰過程に関与する。その結果、ゾーンセンターモードの減衰時間は、短くなると考えられる。シミュレーションによって得られた結果は、この考えを支持するものであり、ゾーンセンターモードの自由誘導減衰過程が FLA フォノンの分散関係に依存していることを明確に示している。特に、式(3-11)によれば、AlAs 層と GaAs 層との原子層数比が 0.55 となる場合に、ゾーンセンターギャップは最も狭くなる。そのため $m=9$ の場合に、ゾーンセンターモードの減衰時間が最も短くなったのである。以上の結果は、ゾーンセンターモードの減衰時間が超格子の周期数だけでなく各構成層の間での原子層数比に対しても非常に敏感であることを示している。

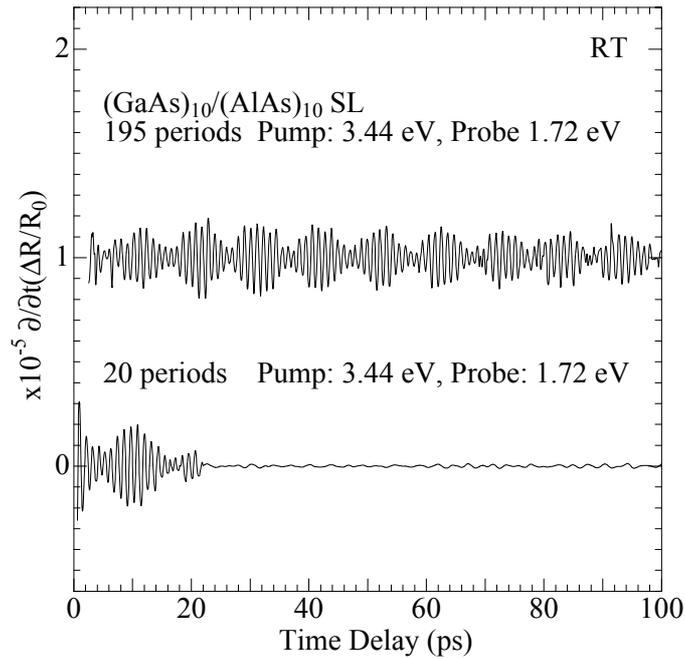


図 3-16. 反射型 2 色ポンプ・プローブ分光法を用いて測定された室温における 195 周期超格子および 20 周期超格子の時間分解反射率変化の時間微分信号。

3-4. 反射型 2 色ポンプ・プローブ分光法によるコヒーレント折返し縦音響フォノンの測定

前節では、ポンプ光とプローブ光とのエネルギーを、 Γ 点における第一電子・重い正孔ミニバンド間の遷移エネルギーである 1.74 eV 近傍に合わせた場合に観測されるコヒーレント FLA フォノンについて取り扱った。このようなエネルギーを有するレーザーパルス光は、超格子全体を励起する。それゆえ、前節まで議論してきた有限サイズ効果は、超格子全体を励起した時に生成される FLA フォノンに対するものであると考えられる。これとは対照的な場合、すなわち超格子層表面のみを励起した場合に生成されるコヒーレント FLA フォノンに対して、有限サイズ効果がどのように働くかということに対する研究は、興味深い。この表面のみを励起するためには、ポンプ光としてより侵入長の短い光、すなわちよりエネルギーの高いレーザーパルス光を用いる必要がある。このレーザーパルス光は、ポンプ光の光軸に非線形光学結晶を置き第 2 高調波を発生させることによって得られる。このようにプローブ光と違う波長の光をポンプ光として用いる測定方法は、反射型 2 色ポンプ・プローブ分光法と呼ばれる。この節では、反射型 2 色ポンプ・プローブ測定を行うことによって観測された FLA フォノンの特性に対する有限サイズ効果について述べる。

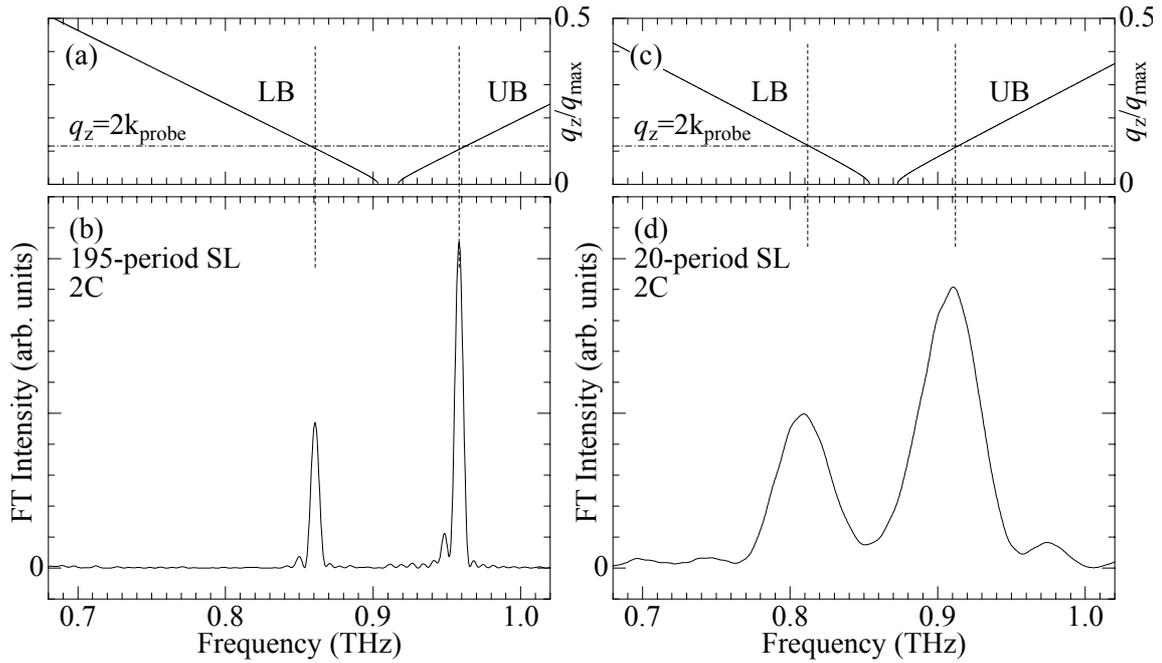


図 3-17. 図 3-16 の振動プロファイルのフーリエ変換スペクトルと FLA フォノンの分散曲線。(a), (c) 式(3-1)を用いて計算された第一 FLA フォノンの分散曲線。(b), (d) 195 周期超格子および 20 周期超格子における時間分割フーリエ変換スペクトル。なお k_{probe} は、プローブ光の波数を示している。

図 3-16 は、反射型 2 色ポンプ・プローブ法によって測定された 20 周期超格子および 195 周期超格子における時間分解反射率変化の時間微分信号の振動プロファイルである。この反射型 2 色ポンプ・プローブ法で用いたエネルギー 3.44 eV のポンプ光の侵入長は、 $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ の吸収係数から見積もると数十 nm 程度であり、20 周期超格子の層厚 113 nm と比べても十分短い。それゆえ 3-3-2 項で述べたように、このポンプ光照射によって、試料表面でフォノン波束が生成されると考えられる。一方、プローブ光のエネルギーは超格子の基礎遷移エネルギー程度の値なので、その侵入長は十分長く、超格子層全体からのフォノンの信号を検出することができると考えられる。それゆえ、本研究の場合、反射型 2 色ポンプ・プローブ測定で検出される時間分解反射率変化は、フォノン波束が超格子層を伝播していく様子を反映すると考えられる。20 周期超格子における振動プロファイルは、時間遅延 22 ps で突然かつ完全に消失している。この 22 ps という時間遅延は、式(3-3)で決定される平均音速から見積もった 20 周期超格子でフォノン波束が超格子表面から基板との界面まで走行するのに要する伝播時間 τ_{escape} と一致している。さらに振動プロファイルが時間遅延 22 ps 以降で観測されないということは、ゾーンセンターモードが生成されていないこと及び生成されたフォノン波束が全て超格子層内から抜け出していることを示唆している。

図 3-17 は、20 周期超格子および 195 周期超格子の反射型 2 色ポンプ・プローブ測定によって検出された振動プロファイルのフーリエ変換スペクトルである。いずれの試料の場合も、2

本のピークが観測されている。3-3-1 項と同様に FLA フォノンの分散曲線と照らし合わせるによりモードの帰属を行った。その結果、観測されたモードは全てプローブ光の 2 倍の波数を有する $2k$ モードであることが判明した。この結果は、3-2-2 項で述べた Mizoguchi らによる報告[17]と一致している。

次にフーリエ変換スペクトルの形状に着目する。20 周期超格子の反射型 2 色ポンプ・プローブ測定によって得られる信号のフーリエ変換スペクトルは、195 周期のものに比べてより広い幅を示している。特に興味深いのは、20 周期超格子における反射型 2 色ポンプ・プローブ信号のフーリエ変換スペクトルが図 3-4 に示されている反射型 1 色ポンプ・プローブ信号のフーリエ変換スペクトルに比べてより広い幅を示している、という点である。図 3-7 が示すように、反射型 1 色ポンプ・プローブ信号の場合のフーリエ変換スペクトルの幅は、波数選択則の破綻でほぼ決定されていると考えられる。反射型 2 色ポンプ・プローブ法で得られたフーリエ変換スペクトルの場合、この波数選択則の破綻以上にスペクトル幅を広げる要因が存在していることが推測される。その要因として考えられるのが、フォノン波束の伝播時間である。前に述べたように、超格子表面で生成されたフォノン波束は超格子層を伝播して基板側へ抜けていくが、それまでの間、すなわちフォノン波束が超格子層内に存在している間でのみ反射率がフォノンによって変調される。それゆえ反射型 2 色ポンプ・プローブ測定で検出される振動数 $\omega(2k)$ の $2k$ モードの振動プロファイルは、その検出過程が光弾性効果によるものであると仮定すると、次式で表すことができる。

$$\begin{aligned} \frac{\Delta R(t)}{R_0} &= A(v_g t) \cos[\omega(2k)t + \phi_0], & 0 < t < \tau_{escape} \\ &= 0, & \tau_{escape} \leq t \end{aligned} \quad (3-12).$$

ここで、 v_g は、フォノン波束の群速度である。また $A(v_g t)$ は、超格子表面を原点とした位置 $z=v_g t$ での光弾性定数を示している。先に述べたポンプ光の侵入長は、数十 nm と、超格子の周期 $D(D=5.66 \text{ nm})$ に比べれば、十分長い。そのため、生成されたフォノン波束の半値幅は、 D よりも大きいと考えられる。そのためフォノン波束の中心が GaAs 層にあるか AlAs 層にあるかに関わらず、 $A(v_g t)$ は、一定の値 A_0 をとると考えることができる。この式に基づいて、20 周期超格子における振動数 0.81 THz の $2k$ モードによる時間分解反射率変化を計算し、その結果をフーリエ変換したのが図 3-18 である。このフーリエ変換スペクトル幅は、40 GHz であり、実験で観測されたモードの半値幅 43 GHz とほぼ一致している。

では、どうして反射型 1 色ポンプ・プローブ分光法で測定された $2k$ モードのフーリエ変換スペクトル幅には、伝播時間の効果がそれほど顕著には現れなかったのであろうか。その答えは、 $2k$ モードの生成の仕方によって、伝播特性がどのように違ってくるかということにあると考えられる。図 3-19 は、それを模式的に示したものである。図 3-19(a)は、表面層のみで

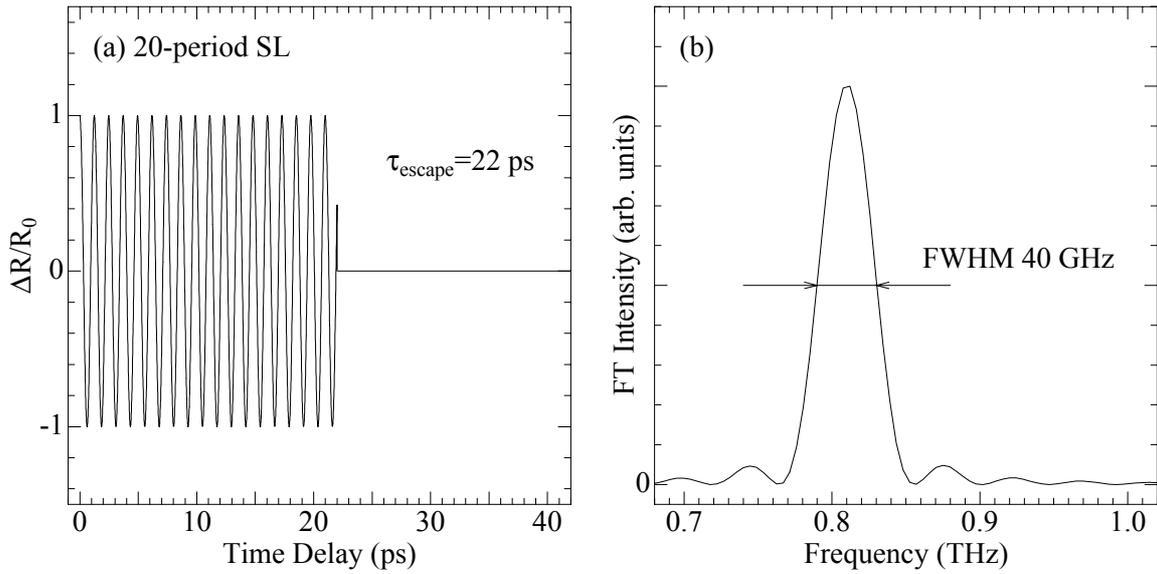


図 3-18. (a) 式(3-12)を用いて計算された 20 周期超格子における振動数 0.81 THz の 2k モードによる時間分解反射率変化。(b) (a)の振動プロファイルのフーリエ変換スペクトル。

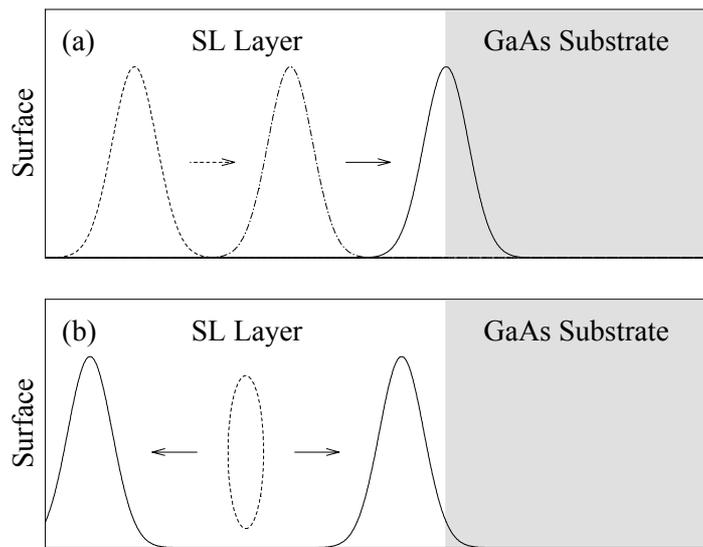


図 3-19. 表面層のみを励起した場合と超格子層全体を励起した場合のフォノンの伝播ダイナミクスを示す模式図。(a) 表面層のみを励起した場合に生成されるフォノン波束。破線と破線は、それぞれ時間遅延 0 fs および τ_{escape} 近傍におけるフォノン波束を示している。フォノン波束は、時間の経過とともに矢印の方向に伝播し、最終的には基板側に抜け出ていく。(b) 超格子層全体を励起した場合に生成される 2k モード。時間遅延 0 fs において図内の楕円内の位置で生成された 2k モードには、基板側へ伝播していくものもあれば、表面層に伝播していくものもある

フォノン波束を生成した場合に相当する。このようにして生成されたフォノン波束は、超格子表面から基板側へ一方通行的に伝播していくと考えられる。図 3-19(b)は、超格子全体を励起することにより 2k モードを生成した場合に相当する。このようにして生成された 2k モー

ドの中には、基板側へ伝播して行くものもあれば、超格子表面側へ伝播して行くものもある。このうち超格子表面に向かって伝播するモードは、表面に達すると、空気と超格子との間での音響インピーダンスの違いから、ほぼ全反射されると考えられる[52]。そのため表面層のみを励起することによって生成されたフォノン波束に比べ、より長い間超格子に滞在するのではないかと思われる。反射型 1 色ポンプ・プローブ分光法で観測された 20 周期超格子の振動プロファイルに対する時間窓[30 ps, 100 ps]の時間分割フーリエ変換スペクトル(図 3-5(a))で 2k モードが完全には消滅していないことは、この考えを支持するものである。

3-5. まとめ

周期数の異なる GaAs/AlAs 超格子におけるコヒーレント FLA フォノンに対する有限サイズ効果の研究を行った。195 周期超格子では、ラマン散乱選択則を満たすモードのみが観測された。一方、20 周期超格子では、195 周期超格子で観測されたモード以外に、ラマン散乱選択則で禁制の上分枝ゾーンセンターモードが観測された。このことは、系の有限性による対称性の破れに起因していると考えられる。さらに 20 周期超格子においては、スペクトル幅のブロードニングが観測された。この現象は、検出されたフォノンの伝播性の違いや波数保存則の破綻に起因していると考えられる。さらに波数保存則の破綻は、ゾーンセンターモードの減衰時間までも影響を与えていることが分かった。ゾーンセンターモードの自由減衰過程に対するモデルを立て、シミュレーションを行い、ゾーンセンターモードの減衰時間が超格子の周期数だけでなく各構成層の間での原子層数比に対しても強く依存していることを見出した。反射型 2 色ポンプ・プローブ分光法によって得られた 2k モードのフーリエ変換スペクトルは、反射型 1 色ポンプ・プローブ分光法によって得られたスペクトルより広い幅を示す。これは、光生成キャリアの空間分布の違いによって、フォノンの伝播特性を反映し観測されるモードの示す特性が異なることを示している。