

第 4 章 GaSb/AlSb 超格子におけるコヒーレント縦光学フォノンの生成機構

4-1. はじめに

第 1 章でも簡単に述べたように、これまでコヒーレントフォノンの生成機構に対してさまざまなモデルが提唱されている。そして、コヒーレントフォノンの生成機構は、対象となる物質がレーザーパルス光に対して透明であるか、不透明であるかということに大きく依存すると考えられている。それゆえ、透明な物質と不透明な物質とが交互に積層された超格子中のコヒーレントフォノン、特に各構成層内に局在した光学フォノンの生成機構に対する研究は、非常に興味深い。一般的なフェムト秒パルスレーザー光の波長は、800 nm 前後であるため、そうした研究の対象となる超格子の一つとしてあげられるのが GaAs/AlAs 超格子であり、これまでこの超格子を対象として研究が行なわれてきている[18-20]。ところがこの超格子で観測されてきたコヒーレント光学フォノンは、これまで GaAs 型縦光学(longitudinal optical, LO)フォノンだけである。この超格子を構成する GaAs および AlAs が属する III-V 族半導体結晶では、本研究に着手するまでは、光生成キャリアを必要とする表面電界遮蔽(Instantaneous screening of surface potential bending, ISSPB)機構[14]しか知られていなかった。そのため、レーザーパルス光に対して透明層である AlAs 層ではキャリアが発生せずコヒーレント AlAs 型 LO フォノンも生成されないと思われていた。ところが、GaAs/AlAs 超格子には、コヒーレントフォノン生成に関してもう一つ根本的な問題が存在する。それは、AlAs 型 LO フォノンの振動周期(82.6 fs)が一般的なフェムト秒パルスレーザー光の時間幅(100 fs)に比べて短いということである。このことは、たとえ ISSPB 機構以外のコヒーレントフォノン生成メカニズムが存在していたとしても、コヒーレント AlAs 型 LO フォノン生成を阻害することにつながり、そのためこの LO フォノンが検出されてこなかったのではないかと考えられる。それゆえ AlAs 型 LO フォノンが観測されていないことに関しては、まだ決定的な原因がわかっていなかったと思われる。このことは、超格子中の LO フォノンの生成メカニズムがまだ議論的であるということを確認している。

ところで、GaAs/AlAs 超格子と同じように波長 800 nm 前後のレーザーパルス光に対して透明な層と不透明な層からなる超格子として、GaSb/AlSb 超格子があげられる。この超格子の透明層である AlSb 層に局在した AlSb 型 LO フォノンの振動数は、約 10 THz である。それゆえ、もし ISSPB 機構以外のメカニズムによってもコヒーレント LO フォノンが生成可能であ

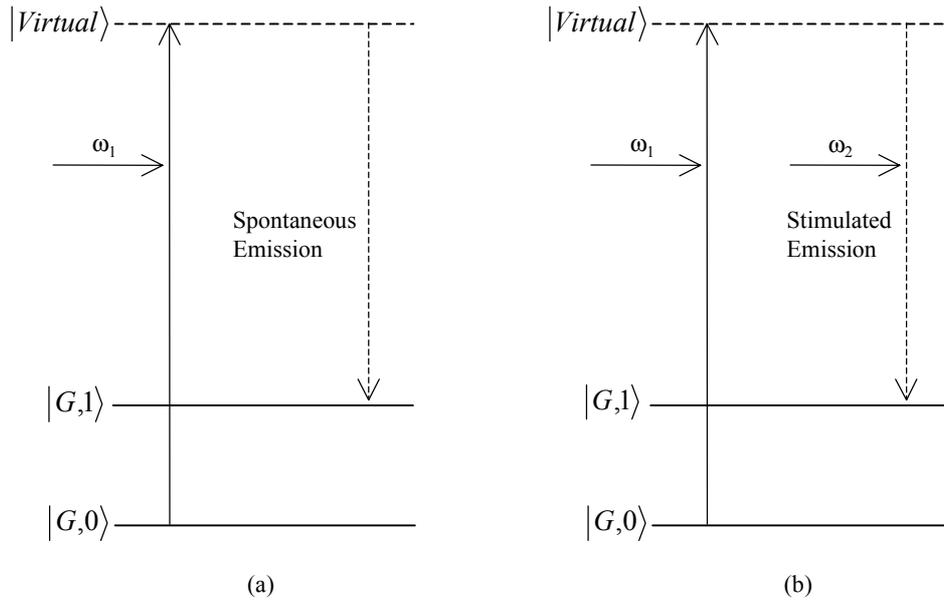


図 4-1. ISRS 機構の模式図。(a)通常のラマン散乱過程の模式図。(b)誘導ラマン散乱過程の模式図。

るとするならば、AlSb 型 LO フォノンの検出が期待できる。そこで本研究では、この GaSb/AlSb 超格子を試料として、各構成層に局在した LO フォノンの検出を試み、超格子中におけるコヒーレント LO フォノン生成機構に関する研究を行った[23,53,54]。その結果、透明層に局在したコヒーレント LO フォノンは誘導ラマン散乱機構(Impulsive stimulated Raman Scattering, ISRS)機構によって生成されることが判明した。

4-2. コヒーレントフォノンの生成機構

この節では、これまでに提唱されているコヒーレントフォノンの生成機構についての説明を行う。

4-2-1. 瞬間誘導ラマン散乱(Impulsive stimulated Raman scattering, ISRS) 機構

ISRS 機構は、バンドギャップが広くレーザー光照射によってキャリアが生成されない物質中でのコヒーレントフォノン生成機構として提唱されているモデルである[10,11,55]。この機構を説明するために、まず物質に対して透明な単一波長のレーザー光を照射した場合に起こ

るラマン散乱過程について説明する。図 4-1(a)は、ラマン散乱過程を示すエネルギーダイヤグラムを示している。この過程では、まず最初に、振動数 ω_1 の励起光照射により電子系が瞬時に応答し、基底状態 $|G,0\rangle$ から仮想的な中間状態 $|\text{virtual}\rangle$ に励起される。次にこの中間状態から振動数 Ω のフォノンと振動数 $\omega_2 = \omega_1 - \Omega$ の散乱光とを自然放出することにより状態 $|G,1\rangle$ に遷移する。

コヒーレントフォノンの測定に用いられるフェムト秒パルスレーザー光は、そのパルスの時間幅が狭い(<100 fs)ため、不確定性原理に従い周波数空間ではある一定のスペクトル幅(>10 THz)を示す。もしこのスペクトル幅がフォノンの振動数 Ω よりも広ければ、一つのレーザーパルス光の中に、振動数 ω_1 の成分と振動数 ω_2 の成分とが同時に存在することになる。このようなレーザーパルス光が物質に照射されると、中間状態から振動数 ω_2 の光が誘導放出される(図 4-1(b))。これが誘導ラマン散乱効果であり、この効果によってコヒーレントフォノンが生成されるというのが ISRS 機構である。

この ISRS 機構では、レーザーパルス光照射によって、原子は熱平衡状態での平衡点から運動を開始し、そのまわりで振動をする。このことは、レーザーパルス光照射直後、時刻 $t=0$ で、振幅が 0 であることを意味している。それゆえ、レーザーパルス光照射後、時刻 t におけるコヒーレントフォノンの振動プロファイルは、 $\sin(\Omega t)$ で表すことができる。実際、レーザーパルス光に対して透明な物質でのコヒーレントフォノンの振動プロファイルは、sine 型を示すことが実験的に確かめられている[56,57]。

4-2-2. 変位励起(Displacive excitation of coherent phonon, DECP)機構

レーザー光に対して不透明な物質では、キャリア生成に伴う物質系全体でのポテンシャルの変化が起こる。それゆえ、不透明物質中でのコヒーレントフォノン生成機構を議論する際、前項で述べた ISRS 機構では想定されていないこうしたポテンシャルの変化を考慮する必要がある。本項で取り上げる DECP 機構[13]とは、フェムト秒パルスレーザー光照射によるキャリア生成が引き金となってコヒーレントフォノンが生成される機構のことである。図 4-2(a)は、原子間の距離 Q を関数とした電子の基底状態及び実励起状態におけるエネルギーダイヤグラムを示したものである。なおこの図では、基底状態における平衡点 Q_0^g を座標原点としている。この基底状態にある物質系で、電子を励起したとする。すると系全体での力のバランスが崩れることが予想される。このことは、励起状態における原子の平衡点の位置 Q_0^{ex} が基底状態におけるそれとは異なっていることを意味している。

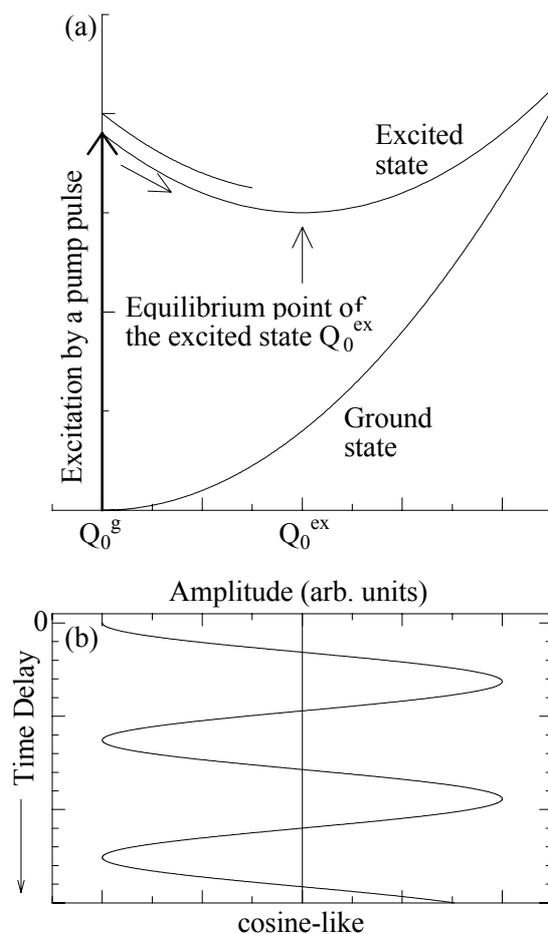


図 4-2. DECP 機構の模式図。(a) 基底状態および励起状態におけるポテンシャル構造。 $Q_0^{g(ex)}$ は、基底状態(励起状態)における構成原子の平衡点に対応する。(b)レーザーパルス照射後の原子の振動プロファイル。構成原子は、 Q_0^{ex} を中心にそのまわりで振動し、その振動プロファイルは cosine 型である。

こうした系にフェムト秒レーザーパルス光を照射し、電子を実励起したとする。まず最初、光吸収により、電子は瞬間的に励起状態に遷移する。この遷移の間、物質を構成する原子の位置は変化しないと考えられる。なぜなら物質を構成する原子と電子との質量比は 1 より遙かに小さいため、それらの間での運動の早さの比も小さくなるためである（フランクコンドン原理）。これは、図内の矢印で示したように、垂直遷移が起こることを意味している。このような垂直遷移が起こった直後、原子系は励起状態での平衡点 Q_0^{ex} を目指して、いっせいに運動を開始する。この時、平衡点 Q_0^{ex} のまわりでコヒーレントな振動をされると考えられる。これが DECP 機構である。

この DECP 機構で特徴的な点は、レーザーパルス光照射により原子が新しい平衡点に向かって動き出し、そのまわりで振動することである。このことは、レーザーパルス光照射直後、すなわち時間遅延 $t=0$ で、既にコヒーレントフォノンが最大振幅となっていることを意味し

ている。それゆえ、レーザーパルス光照射後、時刻 t におけるコヒーレントフォノンの振幅は、図 4-2(b)に示されているように $\cos(\Omega t)$ で表されると予想される。Bi や Sb といった半金属におけるコヒーレントフォノンは、その振動プロファイルが $\cos(\Omega t)$ で表されることから、DECP 機構によって生成されていると考えられている[12,13]。

当然のことながら、場合によっては、この DECP 機構と先ほど述べた ISRS 機構との両方が、ある一つのコヒーレントフォノン生成に対して同時に働くことが予想される。Garrett らは[58]、Sb 中における A_{1g} モードと E_g モードとの同時観測を行い、その二つのモード間での位相差の起因がコヒーレントフォノン生成機構における DECP 機構と ISRS 機構との混成で説明できると主張している。

4-2-3. 表面電界遮蔽(Instantaneous screening of surface potential bending, ISSPB)機構

これまで述べたコヒーレントフォノン生成機構では、レーザーパルス光を除いた外場の存在を考慮していない。こうした外場によるポテンシャルは、物質へのレーザーパルス光照射によって変化する可能性がある。例えば、GaAs のような極性半導体に存在する表面電場によるポテンシャル湾曲は、レーザーパルス光照射で生成されるキャリアに起因する遮蔽効果によって変化する。こうしたポテンシャル湾曲の変化も、コヒーレントフォノン生成の引き金になり得ると考えられる。この項では、表面電場の遮蔽がコヒーレントフォノン生成に与える影響について述べる。

図 4-3 は、GaAs の表面層近傍におけるポテンシャル構造と原子の位置を、模式的に表したものである。図 4-3(a)と(a')は、それぞれ表面電場が存在しないと仮定した場合のポテンシャル構造および構成原子(Ga, As)の位置を示している。しかしながら実際には、上でも述べたように、GaAs の表面層近傍では表面電場が存在するので、表面のポテンシャル構造は、図 4-3(b)のように湾曲している。この状態での構成原子の位置を示しているのが図 4-3(b')である。この図は、連鎖方向に静電場が加わることにより、構成原子がその電荷に応じて変位を起こしていることを示している。この状態で、GaAs の表面にパルス光を照射したとする。光生成電子と正孔は、それぞれ図 4-3(c)の矢印の方向に動き出す。この光生成キャリアの空間分離によって発生した電場は、図 4-3(c)の表面電場と反対の向きをとるため、元々存在した表面電場とお互いに弱め合う。そのため図 4-3(c)の実線が示すようにポテンシャルの湾曲が減少する。このような条件下での原子の平衡点の位置は、図 4-3(c')のように表面電場が存在しないと仮定

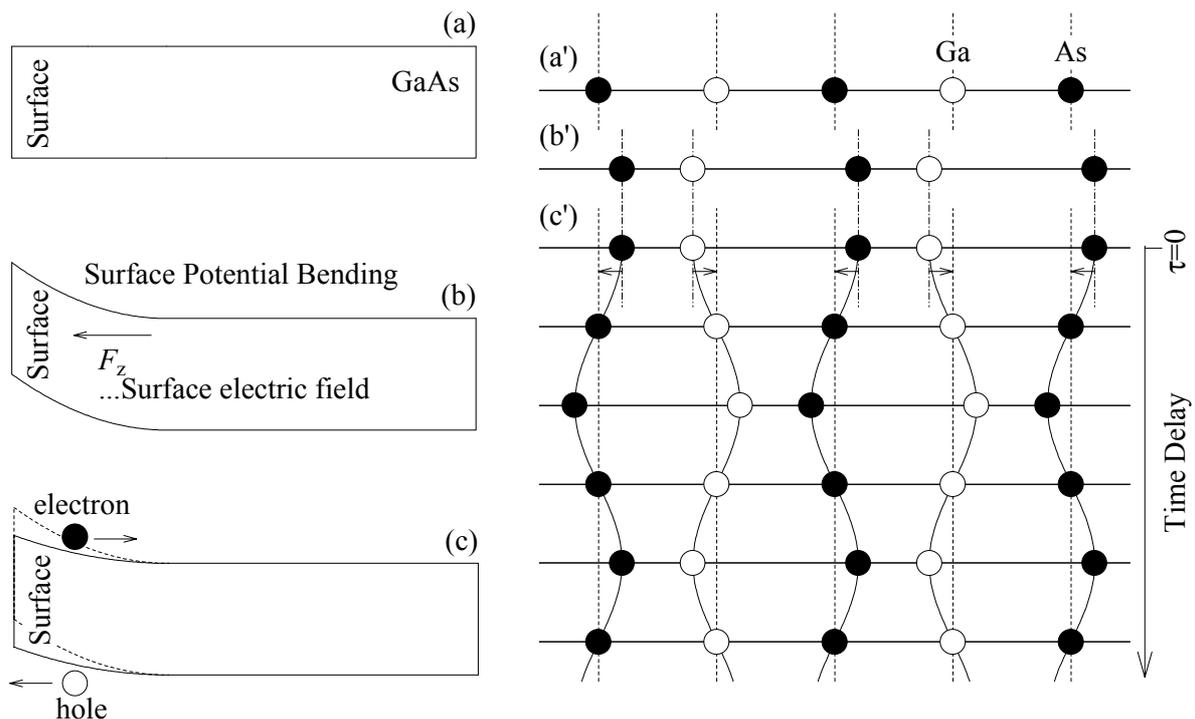


図 4-3 ISSPB 機構の模式図。(a),(a') 表面電場が存在しないと仮定した場合のポテンシャル構造および構成原子(Ga, As)の位置。(a')および(c')内の破線は、この状態における各原子の平衡点の位置を示している。(b),(b') 表面電場が存在する場合のポテンシャル構造および構成原子(Ga, As)の位置。(b')および(c')内の一点鎖線は、この状態における各原子の平衡点の位置を示している。(c),(c') レーザーパルス照射によって生成された電子・正孔間の電荷空間分離によるポテンシャル湾曲の変化とコヒーレント GaAs LO フォノンの生成および時間発展。(c)内の破線は、レーザーパルス照射前のポテンシャル湾曲を示している。(c')中の破線と一点鎖線との間に示された矢印は、レーザーパルス照射直後の原子の運動の方向を示しており、その長さはコヒーレントフォノンの振幅に相当する。

した場合の原子の平衡点の位置を示している破線に近づく。ISSPB 機構とは、この新しい平衡点に向かって構成原子が動き出すことによりコヒーレントフォノンが生成されるとするモデルである。従ってこの生成機構によって生成されたコヒーレントフォノンの時間遅延 t における振幅は、DECP 機構の場合と同様に $\cos(\Omega t)$ で表されると予測される。

このモデルは、まず最初 Cho ら[14]のグループによって提唱された。また Pfeifer らは[59]、GaAs に電極をつけて外部電場を印加することにより、コヒーレントフォノンの振幅が増幅されることを観測し、コヒーレントフォノン生成における電場の効果を確認している。さらに彼らは、コヒーレントフォノンの時間遅延 t における振幅が $\cos(\Omega t)$ に従うことも確認している。

4-3. GaSb/AlSb 超格子におけるコヒーレント縦光学フォノン

4-3-1. GaSb/AlSb 超格子における縦光学フォノンと電子包絡波動関数

本研究で試料として用いたのは、GaAs(001)基板上に MBE 法によって作成された $(\text{GaSb})_m/(\text{AlSb})_m$ 超格子($m=8, 18, 33$)である。ここで添字は、単原子層単位(monolayer, ML)での層厚(1 ML = 0.31 nm)を示している。超格子の周期数は、超格子層全体の厚さがいずれの試料もほぼ同じになるように設計されており、それぞれ 100, 60, 30 周期である。以後、本章では、これらの試料を (m,m) 超格子と呼ぶ。図 4-4 は、一次元鎖モデル[4]を用いて計算された $(8,8)$ 超格子の Γ 点におけるフォノンの格子変位パターンである。横軸と縦軸は、それぞれ超格子の積層方向およびそれに平行な格子変位を示している。図 4-4(c)に示されている折返し縦音響 (folded longitudinal acoustic, FLA) フォノンの格子変位パターンは、このモードが超格子全体に展開するモードであることを示している。一方、図 4-4(a), (b)に示されている GaSb 型 LO フォノンと AlSb 型 LO フォノンの格子変位パターンは、それぞれの LO フォノンが GaSb 層および AlSb 層内に局在していることを明確に示している。次に (m,m) 超格子におけるキャリアの状態を調べるため、有効質量近似[60]を用いて (m,m) 超格子における第一電子ミニバンド状態を計算した。なお計算の際に用いた GaSb と AlSb とにおける電子の有効質量は、真空中の電子の質量を m_0 とすると、それぞれ $0.042 m_0$ および $0.12 m_0$ である[61]。図 4-5 は、第一電子ミニバンド状態の幅を原子層数 m の関数としてプロットしたものである。 $(8,8)$ 超格子では 15 meV 程度のミニバンド幅が存在するのに対し、 $(18,18)$ 超格子および $(33,33)$ 超格子ではミニバンド幅がほぼ消失している。この電子ミニバンド幅というものは、隣接する量子井戸間での包絡波動関数の重なりを反映するものであるから、 $(8,8)$ 超格子に比べて $(18,18)$ 超格子や $(33,33)$ 超格子の電子包絡波動関数は、量子井戸層である GaSb 層により強く局在していると考えられる。このことを確かめるため、 $(8,8)$ 超格子および $(18,18)$ 超格子における Γ 点での第一電子ミニバンドの包絡波動関数を計算した。図 4-5 の挿入図は、その結果である。 $(8,8)$ 超格子の包絡波動関数は超格子層全体に展開している。これとは対照的に、 $(18,18)$ 超格子の場合、包絡波動関数間での重なり合いがほとんどない。このことは、 $(18,18)$ 超格子の場合、隣り合う量子井戸層間での電子のトンネル確率が非常に低いことを示している。それゆえ、 $(8,8)$ 超格子に比べて $(18,18)$ 超格子および $(33,33)$ 超格子では、ISSPB 機構におけるコヒーレント LO フォノンの駆動力である光生成電子・正孔間での電荷空間分離がより強く抑制されている考えられる。

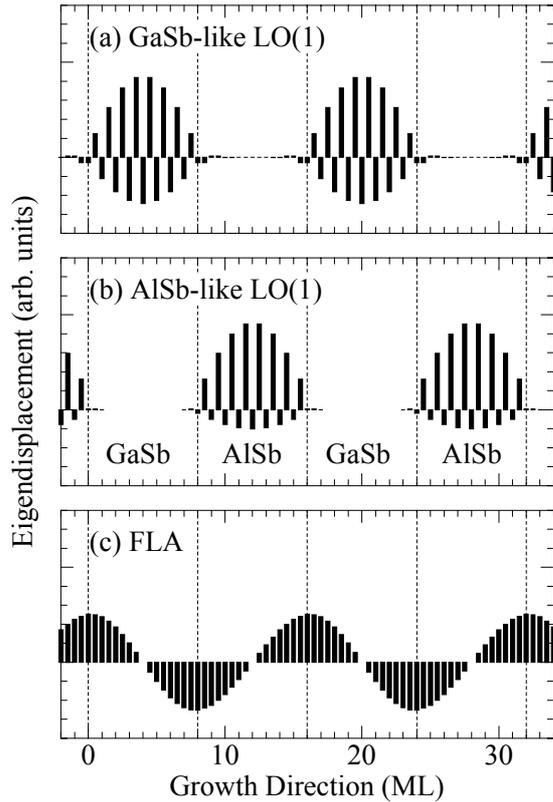


図 4-4. (8,8)超格子の Γ 点における縦モードの格子変位パターン。横軸は、超格子の積層方向に沿った原子の位置を示す。(a) 第一分枝 GaSb 型 LO フォノン。(b) 第一分枝 AlSb 型 LO フォノン。(c) 第一 FLA フォノンの下分枝ゾーンセンターモード。

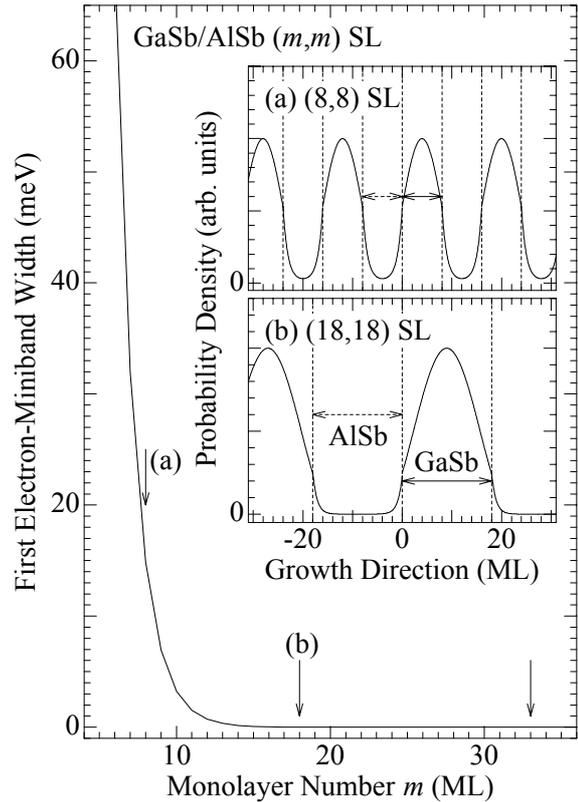


図 4-5. (m,m) 超格子の第一電子ミニバンド状態のバンド幅。矢印は、実験に用いた試料の GaSb 層または AlSb 層の原子層数を示す。挿入図: 有効質量近似に基づいて計算された (a) (8,8)超格子および (b) (18,18)超格子での Γ 点における第一電子ミニバンド状態の包絡波動関数。

4-3-2. コヒーレント GaSb 型縦光学フォノンと AlSb 型縦光学フォノンの同時観測

図 4-6 は、時間遅延変調法を用いて測定された GaSb エピタキシャル膜(膜厚 1.0 μm)、および (m,m) 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を時間遅延の関数としてプロットしたものである。なおレーザーパルス光の時間幅は、25 fs であった。またポンプ光とプローブ光の強度は、それぞれ 150 mW および 4 mW であり、レーザーパルス光のエネルギーは、1.55 eV であった。このレーザーパルス光のエネルギー値は、表 4-1 が示す各超格子試料の室温における基礎遷移エネルギーよりは大きい、AlSb のそれよりは小さい。

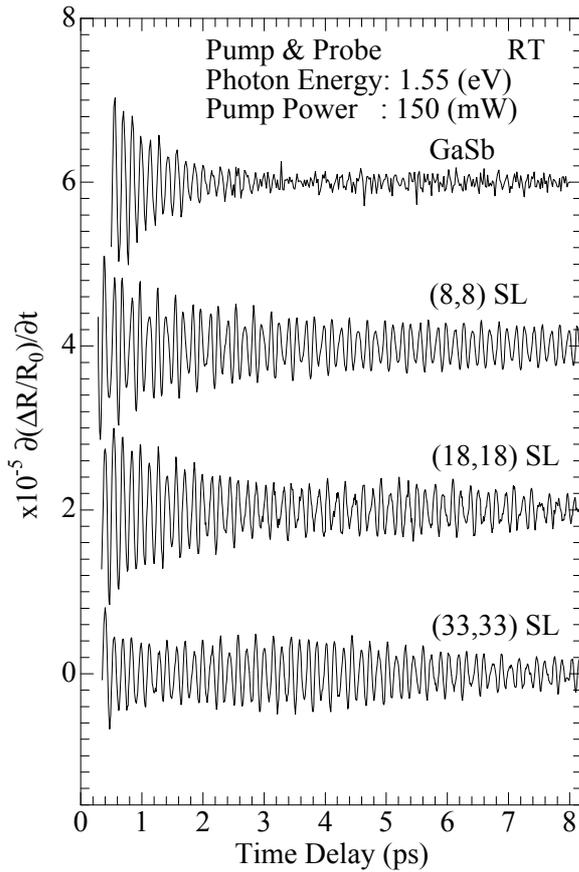


図 4-6. GaSb エピタキシャル膜, (8,8)超格子, (18,18)超格子および(33,33)超格子の室温での時間分解反射率変化の時間微分信号に観測された振動プロファイル。

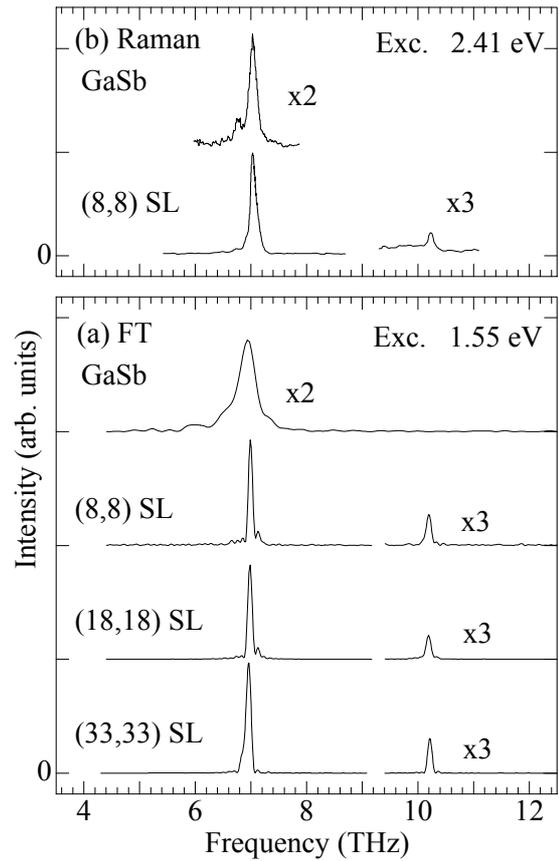


図 4-7. (a) 図 4-3 の時間領域信号のフーリエ変換スペクトル。(b) 室温における GaSb エピタキシャル膜および(8,8)超格子のラマン散乱スペクトル。

図 4-6 が示すようにいずれの試料においても、100 fs オーダーの周期の振動構造が観測されている。この周期は、光学フォノンの振動数に対応するものである。このことは、コヒーレント光学フォノンが観測されていることを示している。また超格子試料における振動プロファイルは、GaSb エピタキシャル膜における振動プロファイルより長い減衰時間を示している。バルク結晶では、LO フォノンの減衰時間が音響フォノン分枝へのエネルギー緩和によって支配されることが知られている[62,63]。このことから超格子試料においてもコヒーレント LO フォノンの減衰時間は、エネルギー緩和によって支配されていると考えられる。このエネルギー緩和過程は、運動量保存則とエネルギー保存則とを同時に満たさなければならない。と

表4-1 各超格子とAlSbの室温における基礎遷移エネルギー

(8,8) SL	(18,18) SL	(33,33) SL	AlSb [43]
1.17 eV	0.909 eV	0.814 eV	1.62 eV

ころが超格子ではミニブリルアンゾーンが形成されているため、その運動量空間は、バルク結晶のものに比べて狭くなっている。このことによって、エネルギー緩和が抑制されることが期待される。これが超格子試料における振動プロファイルの長い減衰時間の起因ではないかと考えられる。

図 4-6 が示すように、超格子試料の振動プロファイルには、300 fs 周期の細かいうなりが観測されている。このことは、複数のモードが生成されていることを示唆している。観測されたモードの帰属を行うために、フーリエ変換を行った。図 4-7 は、図 4-6 における時間領域信号のフーリエ変換スペクトルである。なおこの図には、観測されたコヒーレントフォノンのフーリエ変換スペクトルとの間での比較を行うために、(8,8)超格子と GaSb エピタキシャル膜とのラマン散乱スペクトルも合わせて示している。GaSb エピタキシャル膜のラマン散乱スペクトルには、振動数 6.8 THz と 7.0 THz とで二つのピークが観測されている。これらのピークは、それぞれ GaSb の横光学(TO)フォノンおよび LO フォノンによるものである。また(8,8)超格子のラマン散乱スペクトルにおける 7.0 THz と 10.2 THz のピークは、それぞれ GaSb 型 LO フォノンおよび AISb 型 LO フォノンに由来するものである[64]。次に、コヒーレントフォノンのフーリエ変換スペクトルに着目すると、全ての超格子試料において 7.0 THz と 10.2 THz とに二つのピークが観測されている。これらのピークの位置は、ラマン散乱スペクトルにおいて観測された GaSb 型 LO フォノンおよび AISb 型 LO フォノンのピークの位置と一致する。このことは、超格子の井戸層に局在したコヒーレント GaSb 型 LO フォノンと障壁層に局在したコヒーレント AISb 型 LO フォノンとが同時に観測されていることを示している。

次にそれぞれの試料のフーリエ変換スペクトル形状に着目する。GaSb エピタキシャル膜におけるコヒーレント LO フォノンのスペクトル幅は、超格子試料における GaSb 型 LO フォノンのスペクトル幅よりも広い。これは、図 4-6 における振動プロファイルの減衰時間の違いを反映している。一方、AISb 型 LO フォノンのスペクトル幅は、GaSb 型 LO フォノンのスペクトル幅とほぼ等しい値を示している。このことから両者ともほぼ同じ減衰時間を示すと予想される。このことを確かめるため、時間分割フーリエ変換を行なった。図 4-8(a)は、さまざまな時間窓における(8,8)超格子の時間分割フーリエ変換スペクトルを示している。GaSb 型 LO フォノンおよび AISb 型 LO フォノンの強度は、その比をほぼ一定に保って減少している。各 LO フォノンの減衰過程をさらに詳しく調べるため、それぞれのフーリエ変換スペクトルのピーク強度を時間遅延の関数としてプロットした。図 4-8(b)は、そのプロットを示しており、黒丸と白丸は、それぞれ GaSb 型 LO フォノンおよび AISb 型 LO フォノンの各時間遅延におけるピーク強度を示している。AISb 型 LO フォノンおよび GaSb 型 LO フォノンの減衰プロファイルは、共に指数関数的な振る舞いを示しており、かつほぼ同じ傾きを有する。そこ

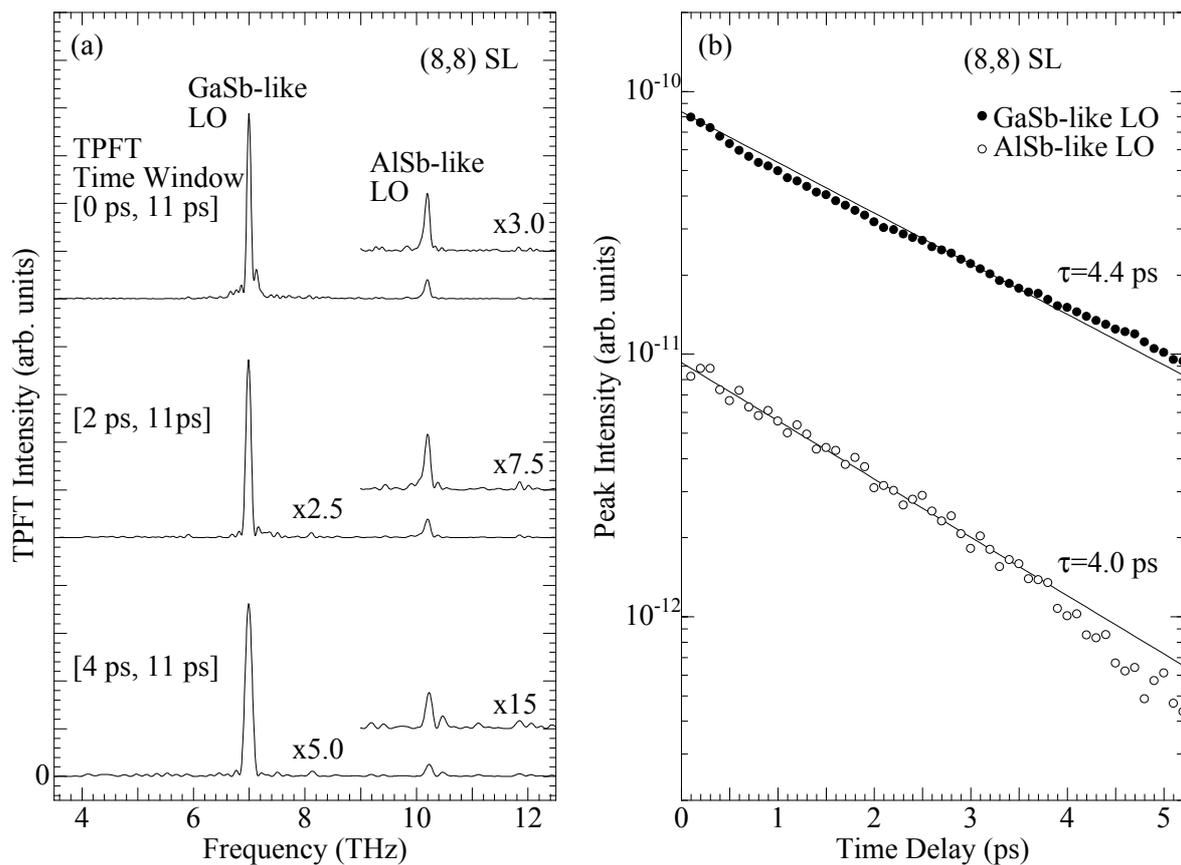


図 4-8. (a) (8,8)超格子において観測された振動プロファイルのさまざまな時間窓での時間分割フーリエ変換スペクトル。(b) 時間遅延の関数としてプロットした(8,8)超格子における時間分割フーリエ変換スペクトルのピーク強度。黒丸と白丸は、それぞれ GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノンのピーク強度を示す。また実線は、実験結果に対し指数関数を用いて行ったフィッティング結果を示す。

で、指数関数を用いてフィッティングを行い、それぞれの振動プロファイルの減衰時間を見積もったところ、AlSb 型 LO フォノンの減衰時間と GaSb 型 LO フォノンの減衰時間は、それぞれ 4.4 ± 0.2 (ps) および 4.0 ± 0.2 (ps) であった。この結果は、先に述べた考えを支持するものである。このように AlSb 型 LO フォノンが GaSb 型 LO フォノンとほぼ同程度の減衰時間を示すということは、超格子中では AlSb 型 LO フォノンに対してもそのエネルギー緩和過程に抑制効果が働いていることを示唆している。

ところで、図 4-7(b)に示されているラマン散乱スペクトルの場合、GaSb エピタキシャル膜と超格子試料との間で、スペクトル幅にそれほど大きな違いが観測されていない。ポンプ・プローブ分光法で観測されるコヒーレントフォノンは、熱平衡状態の試料におけるフォノンとは異なり、強い非平衡性を有すると考えられる。そのためポンプ・プローブ測定では、バルク結晶と超格子試料との間での LO フォノンのエネルギー緩和過程の違いがより顕著に現れることが期待される。それゆえ、ラマン散乱スペクトルが示す傾向とコヒーレントフォノンのフーリエ変換スペクトルが示す傾向との間に違いが生じたのではないかと推測される。

4-3-3. コヒーレント GaSb 型縦光学フォノンおよび AlSb 型縦光学フォノンの初期位相と生成機構

前節 4-2 で述べたように、コヒーレントフォノンの初期位相と生成機構との間には密接な関係がある。それゆえコヒーレントフォノンの生成機構を調べるのに最も有力な方法は、その振動プロファイルの初期位相を解析することであると考えられる。そこで、GaSb/AlSb 超格子におけるコヒーレント LO フォノンの位相を調べた。角振動数 ω_{ph} を持つコヒーレントフォノンの振動プロファイルが時間遅延に対して $\cos(\omega_{ph}t + \varphi_0)$ に従う場合、コヒーレントフォノンによる時間分解反射率変化は、次式で表される[10,13,63]。

$$\frac{\Delta R(t)}{R_0} = A_0 \exp(-\gamma t) \cos(\omega_{ph}t + \varphi_0) \quad (4-1).$$

ここで、 A_0 、 γ および φ_0 は、それぞれ振動プロファイルの初期振幅、減衰率、および初期位相である。ここで、観測されている LO フォノンの振動数が減衰率よりも十分大きいという点を考慮すると、式(4-1)の時間微分、すなわち本実験で観測している時間分解反射率変化の時間微分信号は、次式で与えられる。

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\Delta R(t)}{R_0} \right) \approx -A_0 \omega_{ph} \exp(-\gamma t) \sin(\omega_{ph}t + \varphi_0) \quad (4-2).$$

図 4-9(a)は、試料位置に非線型光学結晶(BBO)を置くことによって発生した SHG 光の強度を時間遅延の関数として測定することによって得られたレーザーパルス光の強度自己相関関数を示しており、第 2 章でも述べたようにそのピークの位置は、時間遅延の原点に相当する。この強度自己相関関数の半値幅は、40 fs である。このことから実験に使用したレーザーパルス光の時間幅は、25 fs であることが分かる。これは、ステッパーの精度(1.0 μm)で決定される光学遅延回路の時間遅延精度(7 fs)の 4 倍程度のパルス幅なので、本実験では時間遅延の原点を精密に決定できていると考えられる。そこで、まず一つのモードによって構成されている GaSb エピタキシャル膜の振動プロファイルに対し式(4-2)を用いてフィッティングを行い、GaSb LO フォノンの初期位相を評価した。図 4-9(b)内の破線は、その結果を示している。フィッティングから得られた GaSb LO フォノンの初期位相の値は、 -14° であった。図 4-9 の時間領域信号は時間での微分信号なので、初期位相として得られたこの値は、GaSb LO フォノンの振動が cosine 型であることを示している。前節 4-2 で述べたコヒーレントフォノンの初期位相と生成機構との関係から判断して、コヒーレント GaSb LO フォノンの生成機構は、ISSPB 機構ないしは DECP 機構のいずれかであると推測される。

図 4-7 の超格子試料のフーリエ変換スペクトルが示すように、GaSb 型 LO フォノンの強度

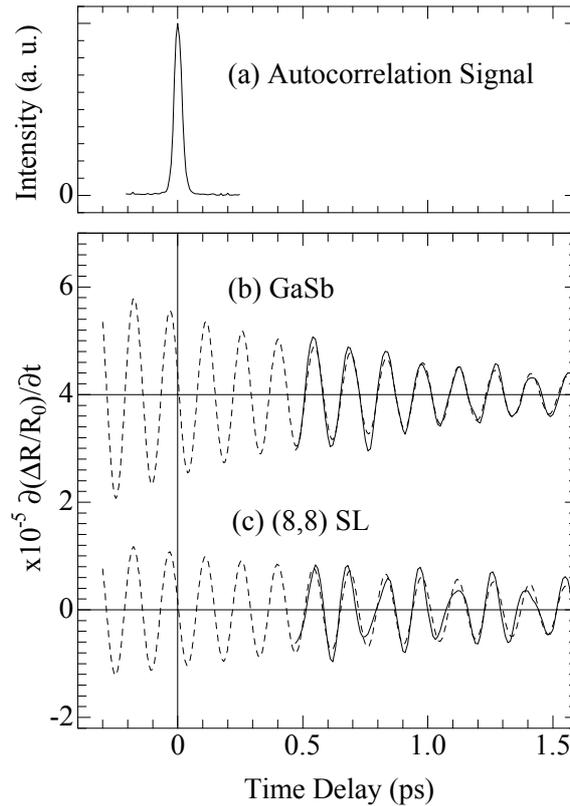


図 4-9. (a) BBO 結晶を用いることによって得られた試料位置におけるレーザーパルス光の自己強度相関関数。(b), (c) GaSb エピタキシャル膜および(8,8)超格子における振動プロファイル(実線)とそれに対し式(4-2)を用いることによって得られたフィッティング結果(破線)。

に対して AlSb 型 LO フォノンの強度は、1/10 程度と十分に小さい。そこで(8,8)超格子における GaSb 型 LO フォノンの初期位相を評価するために、先ほどの GaSb エピタキシャル膜の場合と同じく式(4-2)を用いてフィッティングを試みた。その結果は、図 4-9(c)の破線で示されている。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とフィッティング曲線との間には多少のずれが存在するが、これは振動プロファイルに AlSb 型 LO フォノンの振動が重畳されているためである。このフィッティングで得られた GaSb 型 LO フォノンの初期位相は、 -5° であった。(18,18)超格子と(33,33)超格子とにおいても、その初期位相は、それぞれ 7° および 6° であり、ほぼ 0° に近い値を示している。これらの結果は、超格子中のコヒーレント GaSb 型 LO フォノンの振動が cosine 型であることを示している。

前節 4-2 でも触れたように、cosine 型の振動を生み出す生成機構としては、DECP 機構と ISSPB 機構とが挙げられる。ISSPB 機構におけるコヒーレントフォノンの駆動力は、レーザーパルス光照射によって生成された電子・正孔対の表面電場による分離に起因する電場遮蔽効果である。Kütt らは[65]、コヒーレントフォノンの振幅とこの瞬間的な駆動力との間に強い相関があると報告している。本実験で用いた超格子試料の場合、図 4-5 が示すように、電子

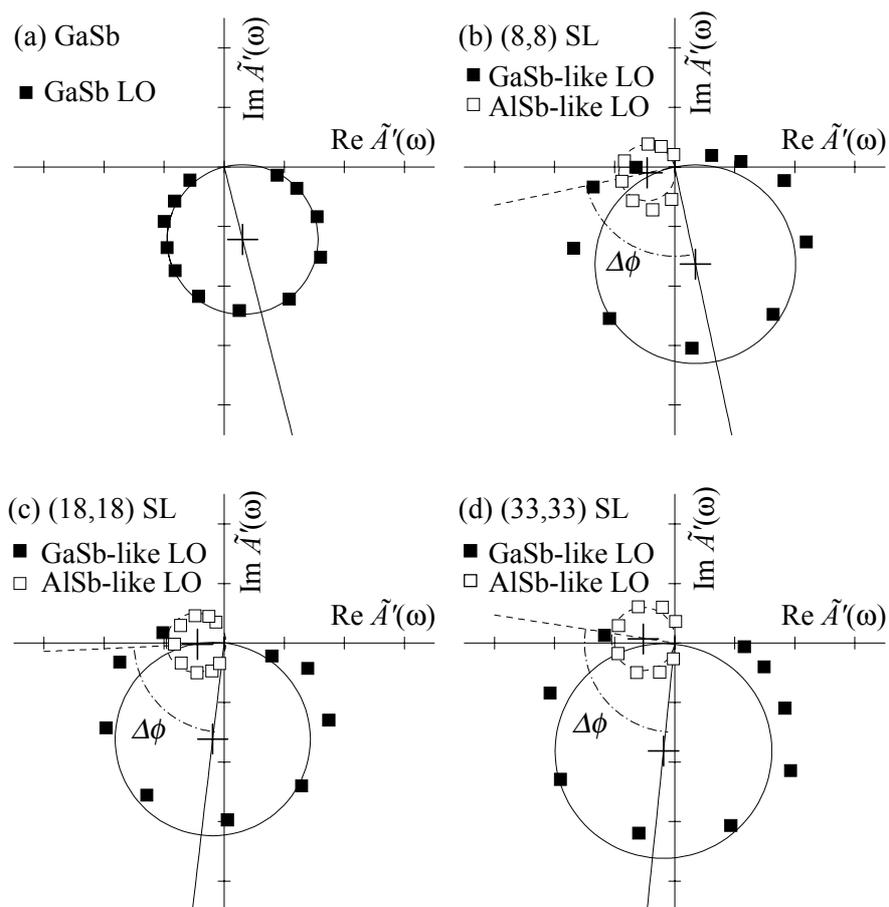


図 4-10. GaSb エピタキシャル膜，(8,8)超格子，(18,18)超格子および(33,33)超格子の振動プロファイルのフーリエ変換 $\tilde{A}(\omega)$ の Cole-Cole プロット。図内の円は、式(2-11)を用いて行ったフィッティング結果を示している。十字印は、そのフィッティングによって得られた円の中心である。 $\Delta\phi$ は、GaSb 型 LO フォノンと AlSb 型 LO フォノンとの間の初期位相差を示している。

のミニバンド幅は、試料ごとに大きく異なる。それゆえ ISSPB 機構におけるコヒーレントフォノンの駆動力すなわち表面電場遮蔽の大きさも、試料ごとによって違わずである。特に、電子包絡波動関数間の重なりが消失している(18,18)超格子および(33,33)超格子では、電子・正孔間での電荷空間分離がほとんど起こらないと考えられる。しかしながら図 4-7 が示すように、全ての超格子試料において、ほぼ同程度の強度のコヒーレント GaSb 型 LO フォノンが観測されている。このことは、ISSPB 機構では説明がつかない。それゆえ、 (m,m) 超格子における GaSb 型 LO フォノンの生成機構は、DECP 機構であると考えられる。

次に、AlSb 型 LO フォノンの生成機構について考察を行う。AlSb 型 LO フォノンの初期位相を時間領域信号に対するフィッティングから求めることには、フィッティングパラメータが多くなることに起因する任意性がある。そこで、第 2 章でも述べたように Cole-Cole プロットを行い、GaSb 型 LO フォノンとの間での初期位相差から AlSb 型 LO フォノンの初期位相を

求めることとした。図 4-10 は、全ての試料における Cole-Cole プロットを示している。この図が示すように、Cole-Cole プロットによって複素平面上で GaSb 型 LO フォノンの成分と AlSb 型 LO フォノンの成分とが明確に分離されている。このことから、任意性を含むことなく観測された二つのモード間での初期位相差を調べることができると考えられる。GaSb エピタキシャル膜における GaSb LO フォノンおよび超格子試料における GaSb 型 LO フォノンの Cole-Cole プロットが描く円の中心は、実数軸よりも虚数軸に近い位置にある。このことは、第 2 章の式(2-11)が示すように、cosine 型振動プロファイルの微分波形に対して Cole-Cole プロットを行う(式(2-11)で $\phi_0=0$ とした場合に相当)と、その円の中心が虚数軸上に位置することを反映したものである。図中に示した $\Delta\phi$ は、GaSb 型 LO フォノンと AlSb 型フォノンとの間の初期位相差を示しており、(8,8)超格子、(18,18)超格子および(33,33)超格子の初期位相差は、それぞれ 89.8° 、 80.5° 、および 91.6° である。これらの値は、GaSb 型 LO フォノンと AlSb 型 LO フォノンとの間に約 90° の初期位相差があることを示している。GaSb 型 LO フォノンは cosine 型の振動プロファイルを示すので、この初期位相差から、AlSb 型 LO フォノンが sine 型の振動をしていると考えられる。

Zeiger ら[13]は、Bi, Sb や Te における A_1 対称性のコヒーレントフォノンは、cosine 型の振動プロファイルを示し、それらの初期位相が、それぞれ $13^\circ \pm 13^\circ$ 、 $+3^\circ \pm 4^\circ$ および $+7^\circ \pm 9^\circ$ であることを報告している。これらのコヒーレントフォノンは、全て同じ生成機構(DECP 機構)によって生成されることが知られている。Zeiger らの観測結果は、生成機構が同じである場合、同一の対称性を持つコヒーレントフォノンの初期位相は、ほぼ同じであることを示している。GaSb/AlSb 超格子は、正方晶(点群 D_{2d})に属するので、今回観測されている GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノンは、両者共に B_2 対称性を有する。GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノンは、共に同じ対称性を持っているにも関わらず、それらの間で初期位相が 90° も異なっているということは、AlSb 型 LO フォノンの生成機構が GaSb 型 LO フォノンの生成機構とは違っていることを示している。

前でも述べたように、GaSb 型 LO フォノンは、DECP 機構によって生成されていると考えられる。DECP 機構は、前節 4-2 で述べたように、結合軌道から反結合軌道へのバンド間励起に基づく生成機構である。このバンド間励起によって平衡点の変化が引き起こされるのであるが、この時構成原子は、励起状態における新しい平衡点に向かって運動を開始する[13]。このように構成原子の平衡点が変わるのであるからこそコヒーレント GaSb 型 LO フォノンの時間領域信号は、cosine 型の振動プロファイルを示すのである。それゆえ、AlSb 型 LO フォノンが cosine 型ではなく sine 型の振動プロファイルに従うということは、構成原子の平衡点が変わっていないということを反映している。それゆえ、AlSb 型 LO フォノンの生成機構は、

DECP 機構ではないと考えられる。そこで、他に考えられる機構としてあげられるのが ISRS 機構である。ISRS 機構では、レーザーパルス光照射によって、熱平衡状態での平衡点、すなわち基底状態での平衡点の周りでの振動が誘起される。そのためフォノンの振動プロファイルは、sine 型になる[10]。ISRS 機構でフォノンが生成されるためには、ポンプパルス光のエネルギー幅がそのフォノンのエネルギーよりも大きいという条件を満たしていなければならない。今回の測定では、この条件は満足されている。それゆえ、AlSb 型 LO フォノンの生成機構は、ISRS 機構であると考えることができる。

これまでのところ、III-V 族半導体で、光生成キャリアを介さずにコヒーレントフォノンが生成されたという報告はない。実験で用いているレーザーパルス光の一パルス当りの強度は、およそ $15 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ と非常に高い値なので、二光子吸収過程によって AlSb 層内にキャリアが生成されている可能性がある。もし二光子吸収過程が効いているのなら、その過程で生成されたキャリアによるこれまで全く知られていない生成機構が存在することになる。そこで、これまで議論してきた GaSb/AlSb 超格子試料におけるコヒーレント LO フォノンの生成機構に対する確認、特に AlSb 型 LO フォノンの生成機構に二光子吸収過程が関与していないか調べるために、それらのフーリエ変換スペクトルのポンプ光強度依存性について調べてみた。角振動数 ω_{ph} のコヒーレントフォノン $Q(r,t)$ が電場強度 $E_0(r,t)$ のレーザーパルス光照射により ISRS 機構を経て生成される場合、その運動方程式は、次式で表される[10,11,55]。

$$\frac{d^2 Q}{dt^2} + \omega_{\text{ph}}^2 Q = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \chi}{\partial Q} \right) |E_0(r,t)|^2 \quad (4-3).$$

ここで $\partial \chi / \partial Q$ は、ラマンテンソルである。この式は、ISRS 機構を経て生成されるコヒーレントフォノンの振幅がポンプ光の強度に比例することを明確に示している。第 2 章で述べたように、コヒーレントフォノンのフーリエ変換スペクトル強度は振幅の 2 乗に比例するので、ISRS 機構で生成されたコヒーレントフォノンのフーリエ変換スペクトル強度は、ポンプ光の強度に対して 2 乗依存性を示すと考えられる。一方、DECP 機構によって生成されるコヒーレントフォノンの振幅は光生成キャリア密度に比例する[13]。一光子吸収過程が優勢である場合、光生成キャリア密度はポンプ光の強度に比例するので、DECP 機構によって生成されるコヒーレントフォノンの振幅は、ポンプ光強度に比例する。それゆえ、そのフーリエ変換スペクトル強度は、ISRS 機構の場合と同様に、ポンプ光強度の 2 乗に比例すると考えられる[13]。これとは対照的に、二光子吸収過程が効いてくる場合、フーリエ変換スペクトルはポンプ光強度の 4 乗で増大すると予測される。

図 4-11(a)は、ポンプ光強度 150 mW および 75 mW における(8,8)超格子の時間分解反射率変化の微分信号を示している。ポンプ光強度 150 mW における時間分解反射率変化の微分信号の振幅は、75 mW 時の振幅の 2 倍になっている。これらの時間領域信号をフーリエ変換した

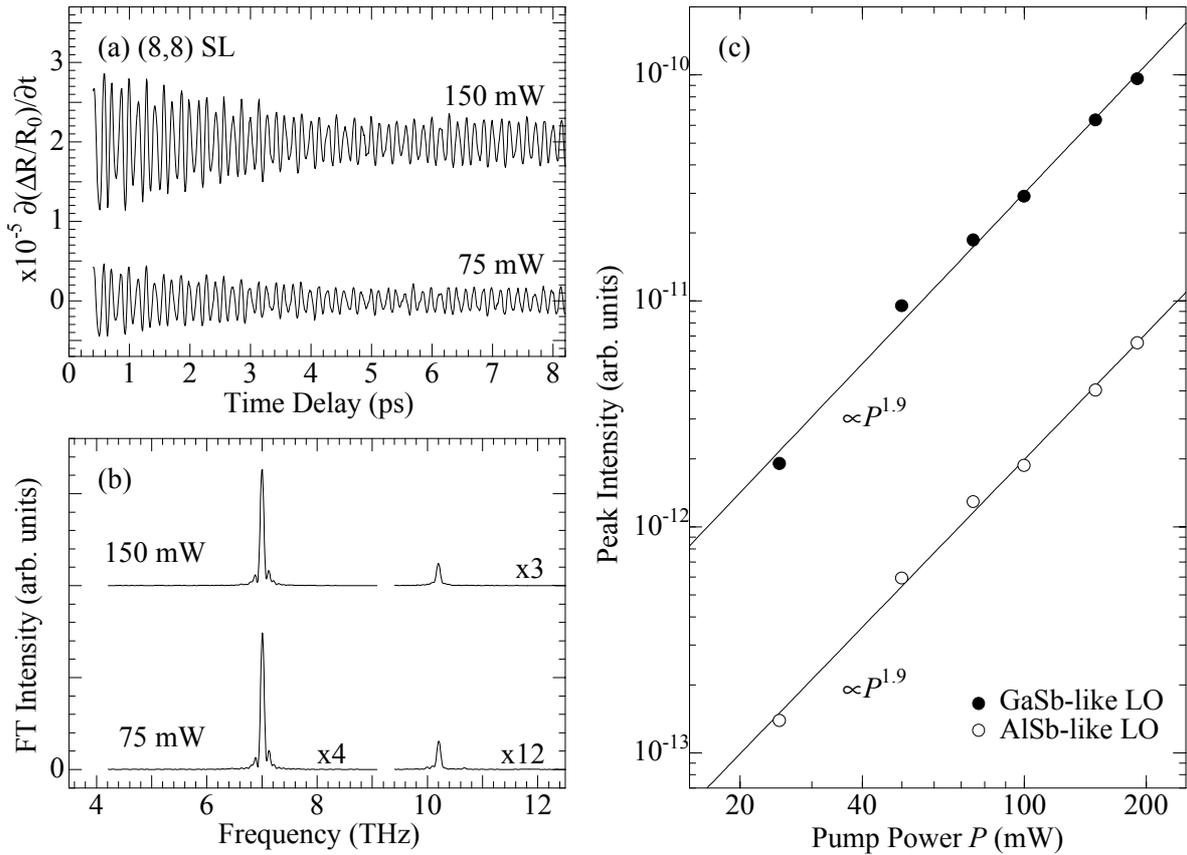


図 4-11. (a) ポンプ光強度 150 mW および 75 mW での(8,8)超格子におけるコヒーレント LO フォノンの振動プロファイル。(b) (a)のフーリエ変換スペクトル。(c) ポンプ光強度 P の関数としてプロットしたフーリエ変換スペクトルのピーク強度。黒丸と白丸は、それぞれ GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノンのピーク強度を示す。実線は、それぞれの LO フォノンのピーク強度に対してべき関数を用いて行ったフィッティング結果を示す。

結果が図 4-11(b)である。ポンプ光強度が 2 倍になると GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノン共にそのフーリエ変換スペクトル強度は、4 倍に増強されている。図 4-11(c)は、GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノンのフーリエ変換スペクトルにおけるピーク強度を、ポンプ光強度 P を関数としてプロットしたものである。実線は、実験で得られたピーク強度に対し、べき関数 P^n を用いてフィッティングを行うことによって得られた直線である。そのフィッティングの結果から得られた n の値は、GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノン共に、1.9 である。このことは、GaSb 型 LO フォノンおよび AlSb 型 LO フォノンのフーリエ変換スペクトル強度がポンプ光強度の 2 乗で変化することを示している。よって、二光子吸収過程に起因するコヒーレントフォノン生成機構によって AlSb 型 LO フォノンが発生しているのではないと確認できたと考えられる。

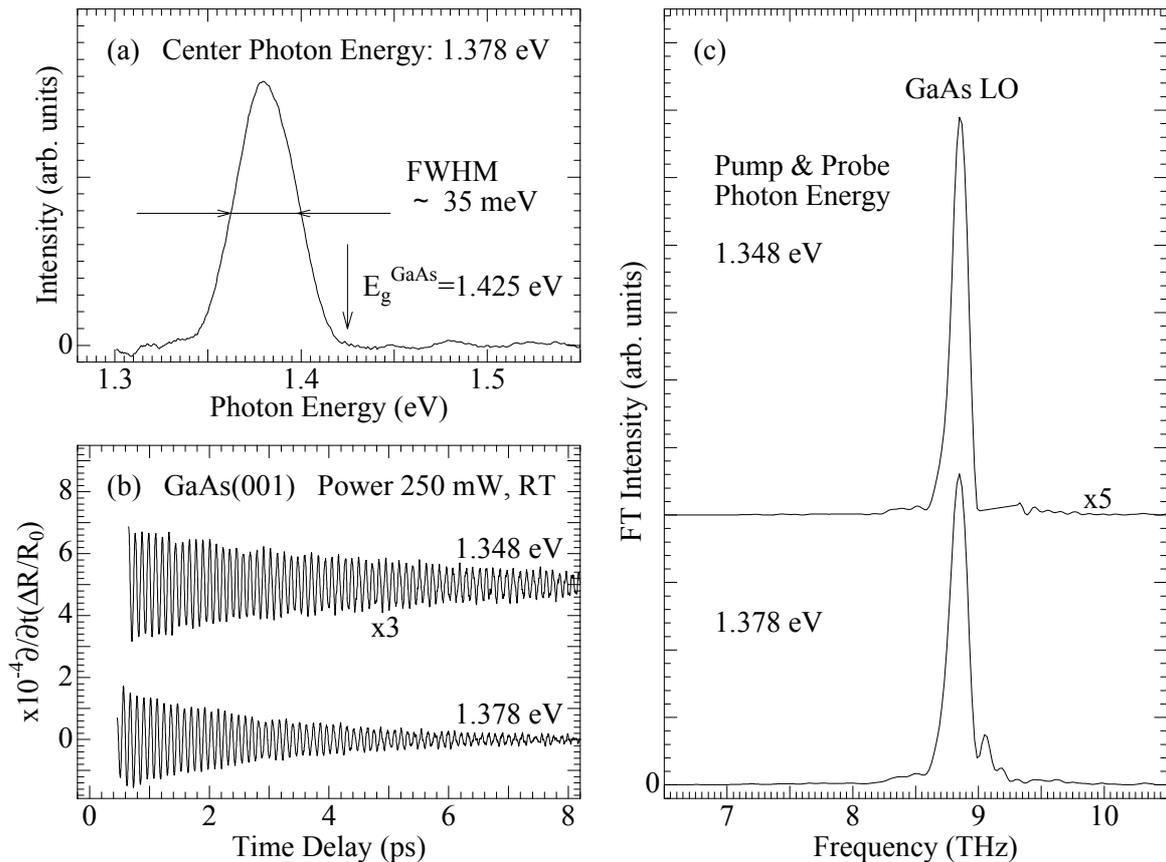


図 4-12. (a) GaAs におけるコヒーレントフォノンの測定に用いたレーザーパルス光のスペクトル。(b) GaAs(001)面方位結晶で観測された時間分解反射率変化の時間微分信号における振動プロファイル。(c) (b)の振動プロファイルのフーリエ変換スペクトル。

4-4. GaAs 単結晶に対し透明なレーザーパルス光を照射した場合のコヒーレント縦光学フォノン

前節では、コヒーレント AISb 型 LO フォノンが ISRS 機構によって生成されるということを明らかにした。ここで、光生成キャリアを介さずにコヒーレント AISb 型 LO フォノンが生成されるという現象は、試料が超格子構造をとっていることに関係しているのかという疑問が生じる。この疑問に答えるには、AISb のバルク結晶を作成し、この試料に対するコヒーレントフォノンの観測を行わなければならない。ところが AISb という物質は、空気中ですぐに酸化されるという非常に不安定な性質を持つ。そのため AISb 結晶の作成およびその測定は、実際問題としては不可能である。そこで間接的にはあるが、GaAs バルク結晶を試料とし、この試料に対して透明なレーザーパルス光を用いてコヒーレントフォノンの観測を行い、光生成キャリアを介さずにコヒーレントフォノンが生成されるという現象が III-V 族半導体の

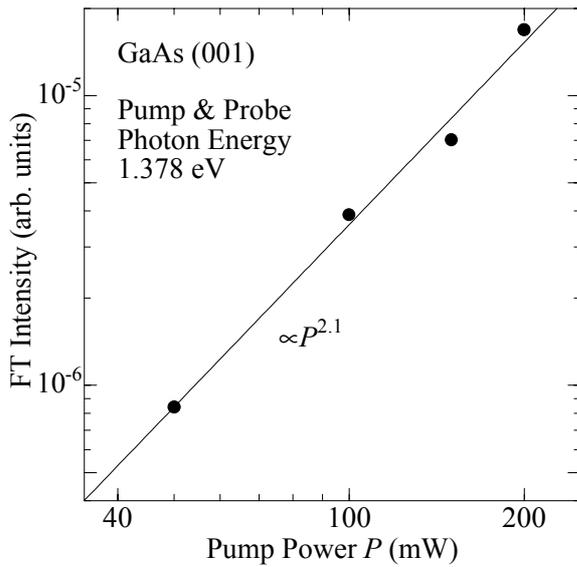


図 4-13. ポンプ光強度の関数としてプロットしたコヒーレント GaAs LO フォノンのフーリエ変換スペクトルのピーク強度。実線は、そのピーク強度に対してべき関数を用いて行ったフィッティング結果を示す。

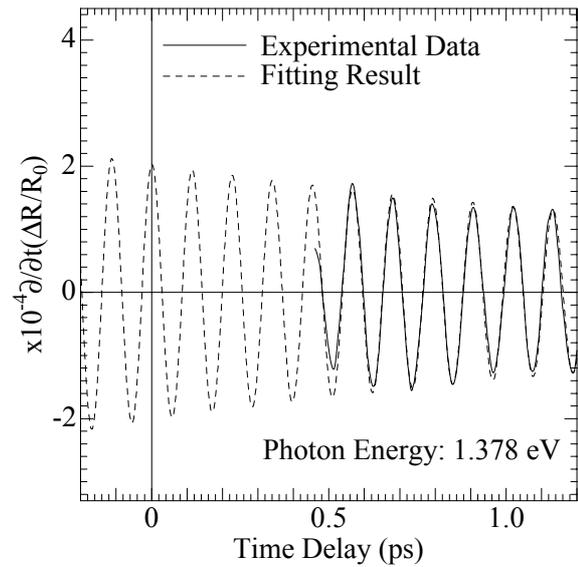


図 4-14. コヒーレント GaAs LO フォノンの振動プロファイル(実線)と、それに対し式(4-2)を用いて行ったフィッティング結果(破線)。

バルク結晶で観測されるのか調べてみた。図 4-12(b)は、GaAs(001)面方位基板における時間分解反射率変化を示している。なお、実験に用いたレーザーパルス光のスペクトルを図 4-12(a)として合わせて示した。この図が示すように、レーザーパルス光は、GaAs の室温における基礎吸収端(1.425 eV [43])よりも低い。このようなレーザーパルス光を用いているにも関わらず、時間分解反射率変化の時間微分信号には、振動構造が観測されている。この振動プロファイルをフーリエ変換した結果が図 4-12(c)である。8.8 THz という振動数でピークが観測されているが、この振動数は GaAs LO フォノンの振動数と一致する。つまり、III-V 族半導体のバルク結晶に対して透明なレーザーパルス光を用いた場合でも、コヒーレントフォノンの生成および検出が可能なのである。このコヒーレント GaAs LO フォノンの生成機構を調べるために、まずフーリエ変換スペクトルのポンプ光強度依存性を調べた。図 4-13 は、ポンプ光強度を関数として GaAs LO フォノンのフーリエ変換スペクトルのピーク強度をプロットしたものである。実線は、プロットしたデータに対して図 4-11 の場合と同じくべき関数 P^n を用いてフィッティングを行った結果を示しており、 n の値は 2.1 である。このことから、バルク結晶中における GaAs LO フォノンの生成機構に対しても、二光子吸収過程が関与していないと考えられる。さらに時間領域信号に対し、式(4-2)を用いてフィッティングを行い、その初期位相を調べた。その結果が図 4-14 である。このフィッティングで得られた GaAs 型 LO フォノンの減衰時間および初期位相は、それぞれ 2.6 ps および 94° であった。図 4-14 の時間領域信号は、時

間での微分信号なので、GaAs LO フォノンの振動プロファイルは sine 型であると考えられる。このことは、透明なレーザーパルス光を用いることにより GaAs バルク結晶中において観測されたコヒーレント LO フォノンは、ISRS 機構によって生成されていることを示している。以上の結果は、III-V 族半導体のバルク結晶であっても光生成キャリアを介さずにコヒーレント LO フォノンが生成されるという現象が観測されることを明確に示している。

4-5. まとめ

反射型ポンプ・プローブ分光法を用いて GaSb/AlSb 超格子におけるコヒーレント LO フォノンのダイナミクスに対する研究を行った。GaSb/AlSb 超格子の時間分解反射率変化を測定することによりコヒーレント GaSb 型 LO フォノンと AlSb 型 LO フォノンとを同時に検出した。超格子試料中のコヒーレントフォノンは、バルク結晶中のコヒーレントフォノンより長い減衰時間を示すことが分かった。これは、超格子におけるミニブリルアンゾーン形成によってコヒーレント LO フォノンのエネルギー緩和過程に抑制が働いたことを反映していると考えられる。時間分解反射率変化の時間微分信号を解析することにより、GaSb 型 LO フォノンの振動プロファイルが cosine 型であることを明らかにした。さらに Cole-Cole プロットを行うことにより、GaSb 型 LO フォノンと AlSb 型 LO フォノンとの間に、約 90° の初期位相差が存在していることが明らかとなった。このことは、AlSb 型 LO フォノンの振動プロファイルが sine 型であることを示している。こうしたコヒーレント LO フォノンの初期位相の違いから、GaSb 型 LO フォノンは DECP 機構によって、AlSb 型 LO フォノンは ISRS 機構によって生成されていると結論した。このことは、光生成キャリアの各構成層間での分布の違いが、透明層に局在した LO フォノンと不透明層に局在した LO フォノンとの間での生成機構の違いを生み出していることを示している。さらに、GaAs 結晶に対して透明なレーザーパルス光を用いて時間分解反射率変化の測定を行った場合でも、コヒーレント LO フォノンを検出することに成功した。この結果は、AlSb と GaSb とが交互に積層され、超格子構造になることによって ISRS 機構がコヒーレント LO フォノン生成機構として働くようになったのではなく、III-V 族半導体のバルク結晶においても同じコヒーレント LO フォノン生成機構が存在していることを示している。