

## 第5章 InAs/GaAs 歪超格子におけるコヒーレント縦光学フォノン・プラズモン結合モード

### 5-1. はじめに

半導体超格子がミニバンド構造を有する場合、包絡波動関数は、超格子全体に展開している。そのためキャリアは、障壁層を含めた超格子内を自由に運動することができる。このような超格子では、キャリアの集団運動の一つであるプラズマ振動(プラズモン)が発現する。このプラズマ振動は、井戸層中の縦光学(Longitudinal optical, LO)フォノンとだけではなく障壁層中の LO フォノンとも結合する。プラズモンは、こうした特性を有するので、超格子のミニバンド状態やキャリアと LO フォノンとの相互作用を調べる上で非常に重要である。これまで述べてきたように、フェムト秒パルスレーザー光を用いた反射型ポンプ・プローブ分光法では、フォノンの振動の減衰時間を得ることができるので、プラズマ振動の減衰時間についても同様に得ることができると考えられる。しかもこの測定では、フェムト秒パルスレーザー光というキャリアの寿命より短い時間幅を有するレーザーパルス光を用いるので、LO フォノン・プラズモン結合状態(LO phonon-plasmon coupled mode, LOPC)を形成するのに必要な高密度キャリアを瞬時に超格子内に生成することができる。こうした利点があるため、反射型ポンプ・プローブ分光法を用いた超格子におけるコヒーレント LOPC モードの研究が近年盛んに行なわれている[19,20]。例えば、Yee らは[20]、GaAs/AlGaAs 超格子中における LOPC モード形成とミニバンド幅の関係を調べ、ミニバンド幅が消失している試料では LOPC モードが検出されないと報告している。ところが本研究に着手するまでは、超格子における LOPC モードの研究は井戸層中の LO フォノンとプラズモンとが結合したモードに限定されており、障壁層中の LO フォノンとプラズマ振動とが結合したモードに関しては、全く報告されていなかった。そこで本研究では、まず障壁層中の LO フォノンと空間的に広がった光生成キャリアとの相互作用に関する情報を得ることを目的として、障壁層中の LO フォノンと結合したプラズモンの検出を試みた[66]。その結果、障壁層中の LO フォノンとプラズモンとが結合することを見出した。さらに、LOPC モードの検出過程と超格子のミニバンド構造との関連性を調べるためにスペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定を行った[67]。

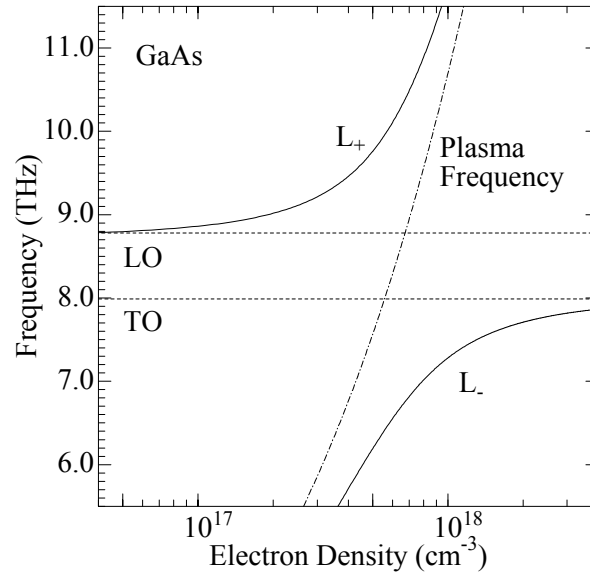


図 5-1. 式(5-1)を用いて計算された GaAs 結晶における LOPC モードの振動数 (実線)および式(5-2)を用いて計算されたプラズマ振動数(一点鎖線) の電子密度依存性。破線は、GaAs の LO フォノンおよび TO フォノンの振動数を示す。

## 5-2. バルク結晶におけるコヒーレント縦光学フォノン・プラズモン結合モード

これまでバルク結晶におけるコヒーレント LOPC モードは、主に n 型 GaAs 結晶を試料として研究が行われてきた。図 5-1 は、電子密度の関数としてプロットした n 型 GaAs 結晶における LOPC モードの振動数である。図内の  $L_+$  と  $L_-$  は、それぞれ上分枝 LOPC モードおよび下分枝 LOPC モードと呼ばれる。 $L_+$  モードの振動数  $\omega_{L_+}$  および  $L_-$  モードの振動数  $\omega_{L_-}$  は、それぞれ次式で与えられる[68]。

$$\omega_{L_{\pm}}^2 = \frac{1}{2} \left[ (\omega_p^2 + \omega_{LO}^2) \pm \sqrt{(\omega_p^2 + \omega_{LO}^2)^2 - 4\omega_p^2 \omega_{TO}^2} \right] \quad (5-1).$$

ここで、 $\omega_{LO}$  と  $\omega_{TO}$  は、それぞれ GaAs LO フォノンの振動数(8.8 THz)および横光学(TO)フォノンの振動数(8.0 THz)である。また  $\omega_p$  は、電子のプラズマ振動数であり、その波数依存性が無視できる場合、次式で与えられる。

$$\omega_p = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_{\infty} m^*}} \quad (5-2).$$

ここで  $n$ ,  $m^*$ , および  $\epsilon_{\infty}$  は、それぞれ電子密度, 電子有効質量( $0.0665 m_0$ )[43]および誘電率( $10.6 \epsilon_0$ ,  $\epsilon_0$ : 真空の誘電率)[43]を示している。図内の一点鎖線は、このプラズマ振動数を電子密度

の関数としてプロットしたものである。図 5-1 が示すように、電子密度が高くなるにつれて、 $L$ モードの振動数と  $L_+$ モードの振動数は、それぞれ TO フォノンの振動数およびプラズマ振動数に漸近する。一方、電子濃度が  $10^{-17}$  ( $\text{cm}^{-3}$ )以下の領域では、 $L$ モードの振動数と  $L_+$ モードの振動数は、それぞれプラズマ振動数および LO フォノンの振動数に漸近する。

式(5-2)が示すように、プラズマ振動数は、結晶中の電子密度に依存している。チタンサファイヤ・パルスレーザー光の中心エネルギーは、一般的に 1.55 eV 近傍なので、このレーザーパルス光を GaAs 結晶に照射するとキャリアが生成される。こうしたレーザーパルス光を用いることによって観測されるコヒーレント LOPC モードの振動数は、光生成キャリア密度か、あるいはそれに元々ドーピングされているバックグラウンドのキャリア密度を足したもののいずれかに依存すると考えられる。Cho ら[15]は、n 型 GaAs 結晶における  $L$ モードのポンプ光強度依存性に対する研究を行い、 $L$ モードの振動数が元々ドーピングされているバックグラウンドのキャリア密度に光生成キャリア密度を足したものに依存することを明らかにしている。また Hase ら[29,30]は、 $L_+$ モードに対して測定を行い、 $L_+$ モードの場合も  $L$ モードと同様に全キャリア密度に対して依存することを見出している。

### 5-3. InAs/GaAs 歪超格子におけるコヒーレント縦光学フォノン・プラズモン結合モード

#### 5-3-1. InAs/GaAs 歪超格子中の縦光学フォノンと電子包絡波動関数

本研究で用いた試料は、MBE 法によって GaAs(001)基板上に作成された  $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_m$  歪超格子 ( $m=10, 30$ )である。ここで添字は、各構成層(InAs 層と GaAs 層)の原子層数を示している。以後、この超格子を  $(1,m)$ 超格子と呼ぶ。 $(1,10)$ 超格子と  $(1,30)$ 超格子の周期数は、超格子層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 300 周期および 100 周期である。これらの試料では、X 線回折法によって、超格子構造特有の衛星反射が観測されている[69]。さらに、それぞれの超格子のミニバンド構造は、光変調反射分光法によって、既に調べられている[70]。 $(1,10)$ 超格子と  $(1,30)$ 超格子の基礎遷移エネルギーは、室温で、それぞれ 1.30 eV および 1.38 eV である。図 5-2 は、 $\Gamma$ 点における第一電子ミニバンドの包絡波動関数を示している。この包絡波動関数の計算は、歪の効果を取り入れた有効質量近似[70]に基づいて行なわれている。いずれの試料においても電子包絡波動関数は、超格子全体に広がっている。それゆえこれらの試料において、均一に広がったキャリアによる超格子の積層方向

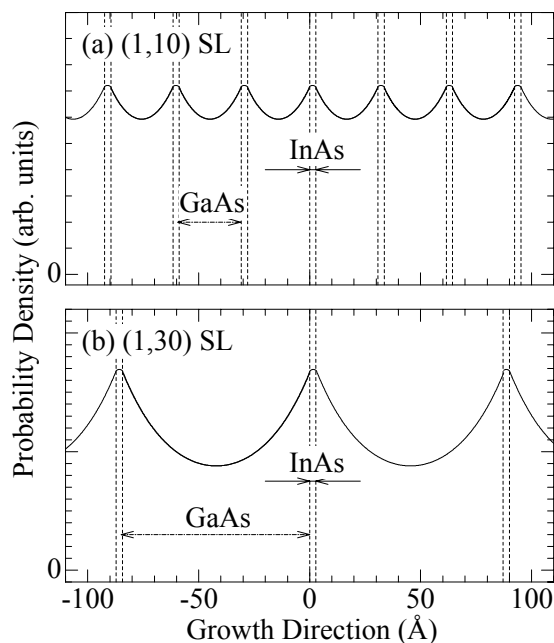


図 5-2. (a) (1,10)超格子および(b) (1,30)超格子での $\Gamma$ 点における第一電子ミニバンドの包絡波動関数。

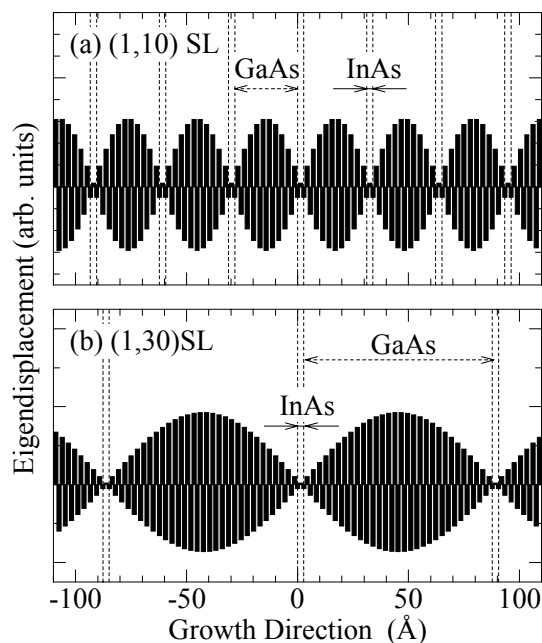


図 5-3. (a) (1,10)超格子および(b) (1,30)超格子での $\Gamma$ 点における第一分枝 GaAs 型 LO フォノンの格子変位パターン。

に沿ったプラズマ振動を観測することが期待できる。図 5-3 は、一次元鎖モデル[4]を用いて計算された、 $(1,m)$ 超格子の $\Gamma$ 点における GaAs 型 LO フォノンの格子変位パターンを示している。GaAs 型 LO フォノンは、いずれの超格子においても InAs 層でほとんど格子変位を示さない。このことは、GaAs 型 LO フォノンが GaAs 層に局在していることを示している。それゆえ、電子包絡波動関数が超格子全体に広がっていない限り、電子と GaAs 型 LO フォノンとは相互作用しないと考えられる。従って、もし GaAs 型 LO フォノンと電子プラズモンとの結合モードが観測されるなら、それは電子が超格子全体に広がっていることを明確に示す証拠となる。

### 5-3-2. GaAs 型縦光学フォノン・プラズモン結合モードのポンプ光強度およびエネルギー依存性

本研究では、反射型ポンプ・プローブ分光法にファースト・スキャン法を組み合わせることでコヒーレント LOPC モードの測定を行った。用いたレーザーパルス光の時間幅は、約 70 fs であった。本実験では、超格子層に生成されたキャリアからの信号を検出するために、GaAs 基板

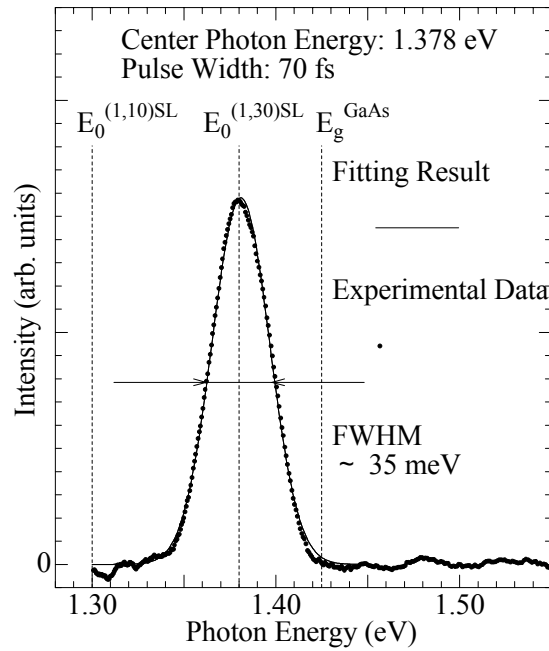


図 5-4. 実験に用いたレーザーパルス光のスペクトル(黒丸)。実線は、ガウス関数によるフィッティング結果を示す。破線は、(1,10)超格子、(1,30)超格子および GaAs 結晶の室温における基礎遷移エネルギーを示す。

内でのキャリア生成を防ぐ必要がある。そのためレーザーパルス光のエネルギーは、GaAs の基礎遷移エネルギー以下に押さえなければならない。図 5-4 は、レーザーパルス光のスペクトルである。図内の破線は、低エネルギー側から順に、(1,10)超格子、(1,30)超格子、GaAs 結晶の室温下での基礎遷移エネルギーを示している。また黒丸は、実測されたスペクトルの強度である。図 5-4 が示すように、用いたレーザーパルス光のエネルギーは、GaAs の基礎遷移エネルギー以下である。実線は、実測されたスペクトルに対してガウス関数を用いることによりフィッティングした結果である。実験結果とフィッティング曲線とはよい一致を示している。このことから本実験で用いたレーザーパルス光のスペクトル形状は、ガウス型であると考えられる。

図 5-5 は、GaAs(001)基板、InAs(001)面方位エピタキシャル膜(厚さ 1.5  $\mu\text{m}$ )、(1,30)超格子、および(1,10)超格子において観測された時間分解反射率変化を数値的に微分することによって得られた振動プロファイルである。GaAs において観測された振動プロファイルは、指数関数的に減衰しており、うなりは観測されていない。このことから、GaAs における振動プロファイルは単一のモードで構成されていると考えられる。一方、それ以外の試料での振動プロファイルは、早く減衰する成分と遅く減衰する成分とで構成されている。このことは、これらの試料において観測されている振動プロファイルが複数のモードで構成されていることを示している。

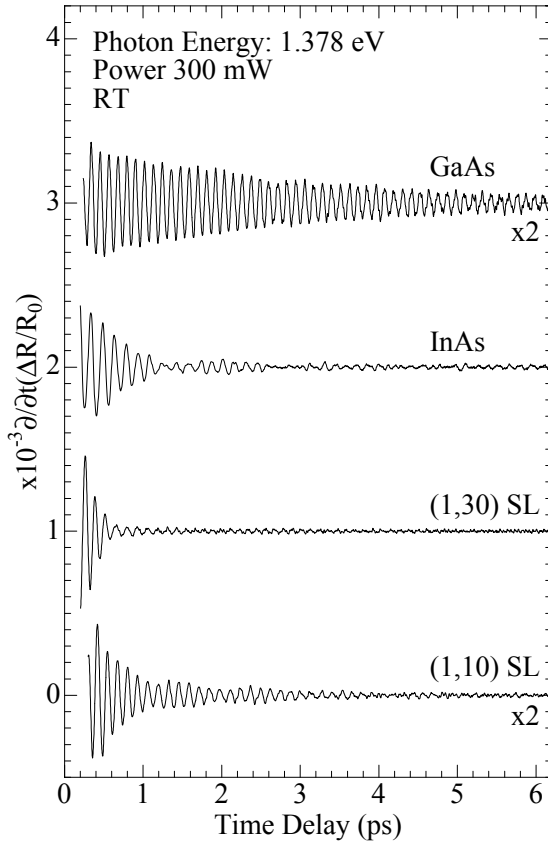


図 5-5. GaAs(001)面方位結晶，InAs エピタキシャル膜，(1,30)超格子および(1,10)超格子における時間分解反射率変化の振動プロファイル。

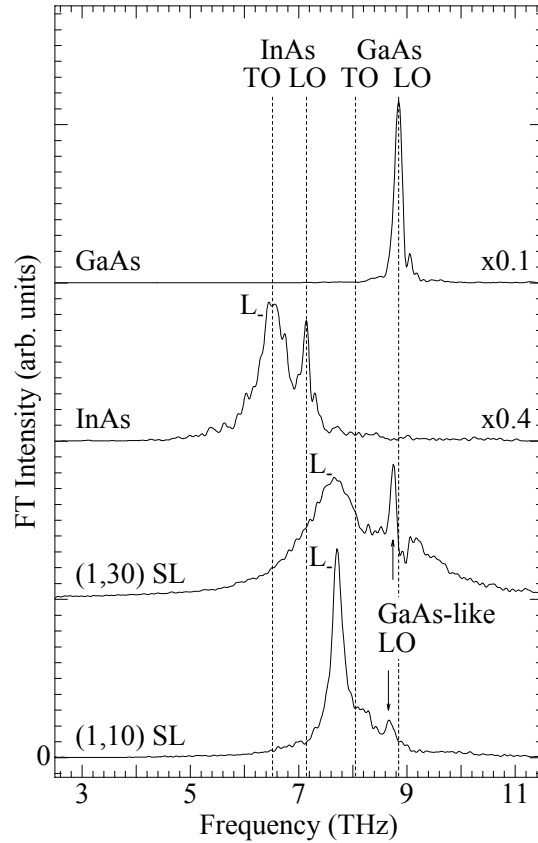


図 5-6. 図 5-5 の振動プロファイルのフーリエ変換スペクトル。

これらの振動プロファイルをフーリエ変換した結果が図 5-6 である。GaAs では、一つのモードが観測されている。このモードの振動数は、GaAs LO フォノンの振動数と一致する。GaAs のフーリエ変換スペクトルには、このモード以外は観測されていない。もし GaAs でキャリアが生成されているとするならば、プラズマ振動に起因するピークが観測されるはずである。それゆえ、GaAs における観測結果は、基板内でキャリアが生成されていないことを明確に示している。一方、図 5-6 が示すように、InAs エピタキシャル膜では、二つのモードが観測されている。このうち 7.2 THz のモードは、InAs LO フォノンである。さらに、6.5 THz においても L とラベルされたモードが観測されている。この振動数は、InAs TO フォノンの振動数 6.5 THz とほぼ一致している。ところが InAs(001)面方位結晶における TO フォノンは、フォノンの対称性に関するラマン散乱選択則に基づけば本来禁制なので、L モードが TO フォノンに起因するモードであるとは考えにくい。InAs の室温における基礎遷移エネルギーは、0.35 eV [43] である。本実験で用いたパルスレーザー光のエネルギーは 1.378 eV なので、InAs ではキ

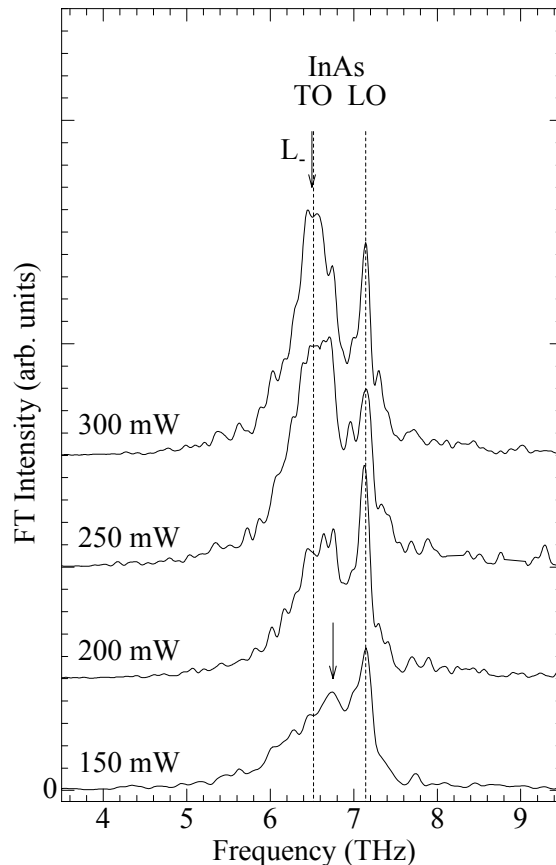


図 5-7. さまざまなポンプ光強度における InAs エピタキシャル膜のフーリエ変換スペクトル。

キャリアが生成されている。それゆえ、6.7 THz のモードは、光生成キャリアに関係したモードであると考えられる。そこで  $L$  モードの起源を調べるために、InAs エピタキシャル膜における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 5-7 は、さまざまなポンプ光強度でのフーリエ変換スペクトルを示している。 $L$  モードは、150 mW では、LO フォノンと TO フォノンとの間の振動数領域に位置しているが、ポンプ光強度が上がるに従い、TO フォノンの振動数側へ漸近してゆく。ポンプ光強度は、それによって生成されるキャリア密度に相当するので、図 5-7 は、 $L$  モードのキャリア密度依存性を示していると考えられる。 $L$  モードが示すこの特性は、InAs 中でのコヒーレント下分枝 LOPC モード(コヒーレント InAs  $L$  モード) に対する Kamioka らの報告[71]と一致している。それゆえ、観測されたモードは、InAs  $L$  モードであると考えられる。一般の III-V 族半導体中における  $L$  モードの振動数は、LO フォノンと TO フォノンとの間の振動数領域に位置することはない。InAs の場合、その表面には、薄い電子蓄積層が存在している。この表面層にキャリアが閉じ込められることによって、位置と波数との間の不確定原理に基づき、通常ほとんど無視できるプラズモンの波数分散が効いてくる[72]。プラズモンの波数分散関係は次式で表される[73]。

$$\omega_p(k) \approx \omega_p^0 + \beta k^2 \quad \left[ \text{with } \omega_p^0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_\infty m^*}} \right] \quad (5-3).$$

ここで  $n, m^*$ , および  $\epsilon_\infty$  は、それぞれキャリア(電子または正孔)密度, キャリアの有効質量および誘電率を示している。また  $\beta$  は、比例定数で正の値を取る。この式は、波数が大きいほどプラズモンの振動数が増大することを示している。このことが TO フォノンと LO フォノンとの間の振動数領域で L モードが観測されることにつながると考えられている。さらに InAs 中のプラズモンでは、これだけでなく高密度キャリアによるトーマス-フェルミの誘電関数の効果も考慮しなければならない。トーマス-フェルミの誘電関数は、キャリア密度が大きくなるに従いその値が大きくなる。このことは、式(5-3)の  $\omega_p^0$  が示すように、プラズモンの振動数を低下させることにつながる。この効果により、LO フォノンと TO フォノンとの間の振動数領域に位置していた LOPC モードが光生成キャリア密度の増大とともに TO フォノン側に漸近していくと考えられる。

図 5-6 に示されている(1,30)超格子のフーリエ変換スペクトルにも振動数 7.6 THz および 8.8 THz において 2 つのモードが観測されている。このうち振動数 8.7 THz のモードは、GaAs 型 LO フォノンである。GaAs 型 LO フォノンの振動数は、GaAs 結晶中の LO フォノンの振動数 8.8 THz より約 0.1 THz 低い値を示している。GaAs と InAs との格子定数は、それぞれ 5.653 Å および 6.058 Å である[43]。このように格子定数に大きな違いがあるため、GaAs 層は、InAs 層から引っ張り歪を受ける。III-V 族半導体における引っ張り歪は、LO フォノンの振動数を低下させる [74]。(1,30)超格子において観測された GaAs 型 LO フォノンの振動数は、こうした歪の効果を反映していると考えられる。(1,10)超格子においても、GaAs 型 LO フォノンが観測されている。(1,10)超格子における GaAs 型 LO フォノンの振動数は、(1,30)超格子のそれと比べて低い値を示している。(1,10)超格子における GaAs の層厚は、(1,30)超格子におけるそれよりも薄い。Terauchi ら[69]は、(1, $m$ )超格子における面内の格子定数が GaAs 層厚の減少に伴い大きくなることを報告している。それゆえ、(1,10)超格子における歪が(1,30)超格子における歪よりも大きくなり、GaAs 型 LO フォノンの振動数が低下したと考えられる。

(1,30)超格子において観測された振動数 7.6 THz のモードの帰属を行うために、InAs エピタキシャル膜の場合と同様に、さまざまなポンプ光強度における時間分解反射率変化の測定を行った。図 5-8 は、各ポンプ光強度において得られた振動プロファイルのフーリエ変換スペクトルを示している。この図が示すように、ポンプ光強度が増すにつれ、L モードの振動数は、GaAs 型 TO フォノンの振動数に漸近していく。この L モードの振る舞いは、GaAs バルク結晶における下分枝 LOPC モードと類似している[15]。このことにより、(1,30)超格子において観測された L モードは、下分枝 GaAs 型 LOPC モード(GaAs 型 L モード)に帰属される。この



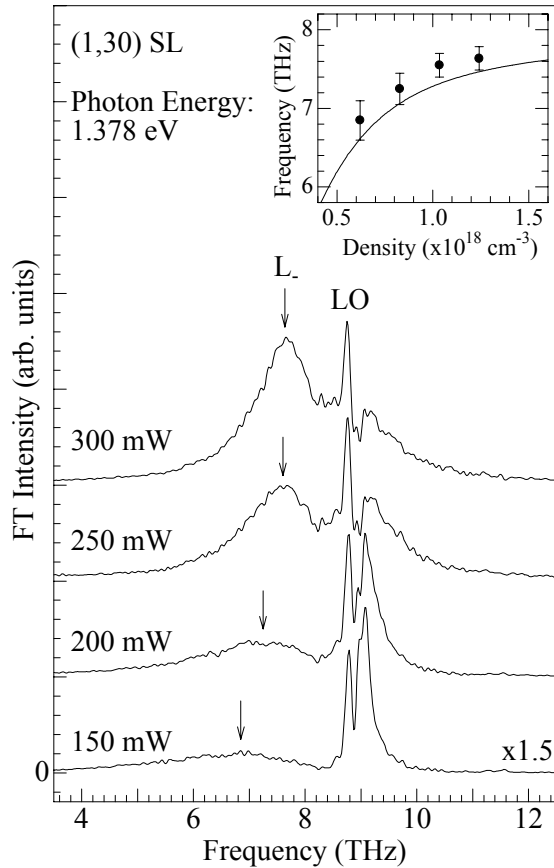


図 5-8. さまざまなポンプ光強度における(1,30)超格子のフーリエ変換スペクトル。挿入図: 光生成電子密度の関数としてプロットした  $L$  モードの振動数。黒丸は、実験によって得られた値を、実線は、式(5-1), (5-2)と(5-4)を用いて計算された GaAs 型  $L$  モードの振動数を示している。

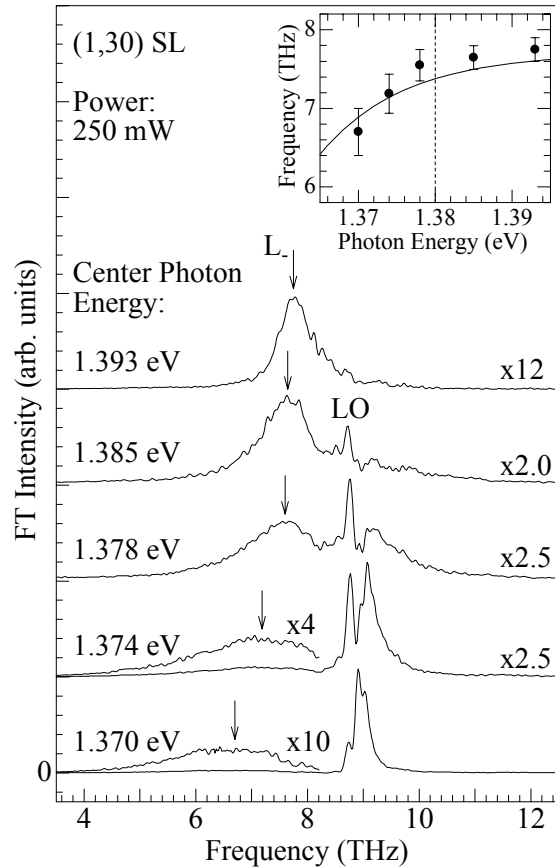


図 5-9. さまざまなレーザーパルス光エネルギーにおける(1,30)超格子のフーリエ変換スペクトル。挿入図: レーザーパルス光エネルギーの関数としてプロットした  $L$  モードの振動数。黒丸は、実験によって得られた値を、実線は、式(5-1), (5-2)と(5-4)を用いて計算された GaAs 型  $L$  モードの振動数を示している。

結果は、超格子における障壁層中の LO フォノンとプラズモンとが結合していることを示している。この GaAs 型  $L$  モードは、先ほどの InAs  $L$  モードとは異なり LO フォノンと TO フォノンとの間の振動数領域で観測されることはなかった。このことから(1,30)超格子では、InAs エピタキシャル膜が有する表面電子蓄積層は、存在していないと考えられる。なお、(1,30)超格子では、InAs 型 LO フォノンとの結合モードが検出されなかった。(1,30)超格子では、InAs 層の層厚が GaAs 層に比べて極端に薄いので、InAs 型  $L$  モードが生成されていたとしてもその信号強度が非常に弱く検出にかならなかったためであると思われる。

GaAs 型  $L$  モードは、図 5-6 が示すように、(1,10)超格子でも観測されている。(1,10)超格子における GaAs 型  $L$  モードの振動数は、(1,30)超格子のものに比べて高い値を示している。このことは、(1,10)超格子では、(1,30)超格子より高密度なキャリアが生成されていることを示唆している。(1,30)超格子の基礎遷移エネルギーは、1.38 eV である。本実験に用いたレーザ

ーパルス光の中心エネルギーは、図 5-4 が示すように、この値とほぼ等しい。そのためパルスレーザー光のうち、高エネルギー側半分だけの光子しか吸収されない。一方、(1,10)超格子の基礎遷移エネルギーは、1.30 eV なので、レーザーパルス光の中に含まれる光子のほぼ全てが超格子層内に吸収される。このことが、(1,10)超格子でのより高密度なキャリアが生成につながったと考えられる。

次に、(1,30)超格子における GaAs 型 L<sub>L</sub>モードの光生成キャリア密度依存性を定量的に評価する。図 5-2 で示したように、電子包絡波動関数は超格子全体に展開している。このことは、電子が超格子層内で、バルク結晶と同じように 3 次元的に広がっていることを示している。それゆえ(1,30)超格子における GaAs 型 L<sub>L</sub>モードの振動数 $\omega_L$ は、5-2 節で述べた n 型 GaAs 結晶の場合と同じく式(5-1)で与えることができると考えられる。(1,30)超格子では、先に述べたようにその表面に電子蓄積層がないと考えられるので、プラズモンの波数依存性を考慮する必要がないと思われる。それゆえプラズマ振動数は、式(5-2)で表すことができる。(1,30)超格子では、重い正孔ミニバンド幅がたかだが 2 meV ほどしかない。ミニバンド幅は包絡波動関数間の重なりを示すものであるから、超格子の積層方向に沿った重い正孔の運動は、抑制されていると考えられる。それゆえ、(1,30)超格子で観測されている LOPC モードは、電子プラズマ振動と GaAs 層に局在した GaAs 型 LO フォノンとが結合したモードであると考えられる。そこで、(5-2)式に現れている有効質量  $m^*$  として、GaAs の電子有効質量(0.0665  $m_0$  [43])を採用した。さらに(1,30)超格子層のほとんどが GaAs 層で占められていることを考慮して、 $\epsilon_\infty$ の値として GaAs 結晶の値 10.6  $\epsilon_0$  [43]を用いた。

図 5-4 が示すように、本研究で用いたレーザーパルス光は、幅の広いスペクトル形状を示す。それゆえ、たとえレーザーパルス光の中心エネルギーが基礎遷移エネルギー以上であったとしても、超格子に入射した光子の全てが吸収されるとは限らない。こうした点を考慮し、光生成キャリア密度  $n$  は、次式で表すことができると仮定した。

$$n = (1 - R)\alpha F \int_{E_0}^{\infty} G(E) dE \quad (5-4).$$

ここで  $R$ ,  $\alpha$  および  $E_0$  は、それぞれ試料の反射率, 吸収係数, および基礎遷移エネルギーである。計算に用いた  $R$  および  $\alpha$  の値として、 $\epsilon_\infty$  の場合と同じ理由から、GaAs の基礎遷移端近傍での値( $R^{\text{GaAs}} = 0.327$ ,  $\alpha^{\text{GaAs}} = 12.21 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$  [43])を採用した。式(5-4)の  $F$  は、ポンプ光の光子フラックスである。この値を決定するには、ポンプ光のスポットサイズの値が必要である。試料位置でのポンプ光のスポットサイズを実際に測定することによって求めたその値は、約 70  $\mu\text{m}$  であった。 $G(E)$  は、用いたレーザーパルス光のスペクトルであり、図 5-4 のフィッティング結果から判断して、ガウス関数で表すことができると仮定した。このガウス関数に

対する式(5-4)の積分は、基礎遷移エネルギー以上のフォトンが超格子内に吸収されることを示している。

図 5-8 内の挿入図は、GaAs 型 L モードの振動数を光生成電子密度の 2 乗根の関数としてプロットしたものである。黒丸は実験から得られた値を、実線は式(5-1), (5-2)と(5-4)を用いて計算された結果を示している。フィッティングパラメーターを用いていないにも関わらず、実験結果と理論とはよい一致を示している。

式(5-4)が示すように、超格子層内に吸収される光生成キャリア密度は、試料の基礎遷移エネルギー近傍でポンプ光の中心エネルギーを変えることにより大きく変化することが期待される。図 5-9 は、さまざまなレーザーパルス光エネルギーにおける(1,30)超格子の GaAs 型 L モードのフーリエ変換スペクトルを示している。レーザー光強度を一定に保っているにも関わらず、GaAs 型 L モードの振動数は、レーザーパルス光の中心エネルギーが大きくなるに従い大きくなる。このことは、(1,30)超格子内で生成されるキャリア密度が増加したことを反映していると考えられる。図 5-9 内の挿入図は、GaAs 型 L モードの振動数をレーザーパルス光の中心エネルギーを関数としてプロットしたものである。黒丸と実線は、それぞれ実験結果で得られた値および式(5-1), (5-2)と(5-4)を用いて計算された結果を示している。この挿入図において、実験結果と理論とはよい一致を示している。このことは、GaAs 型 L モードの振動数のポンプ光エネルギー依存性が光生成キャリア密度の変化によって説明できることを明確に示している。

### 5-3-3. GaAs 型縦光学フォノン・プラズモン結合モードのスペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定

図 5-8 が示すように、GaAs 型 L モードのフーリエ変換スペクトルの幅は、ポンプ光強度によって大きく変化する。スペクトル幅は LOPC モードの減衰時間と密接に関係するものであるから、このことはポンプ光強度変化によって GaAs 型 LOPC モードの減衰過程になんらかの変化が生じることを示唆している。さらに図 5-9 が示すように、(1,30)超格子における GaAs 型 L モードの強度は、レーザーパルス光の中心エネルギーを変えることによって大きく変化する。特にレーザーパルス光のエネルギーが 1.393 eV の場合、GaAs 型 L モードの強度は、レーザーパルス光のエネルギーが 1.385 eV の場合の強度の約 1/6 である。このことは、コヒーレント LOPC モードの検出過程において何らかの共鳴効果が存在していることを示唆している。こうした LOPC モードの減衰過程や共鳴効果について詳細に調べるには、低温に冷却

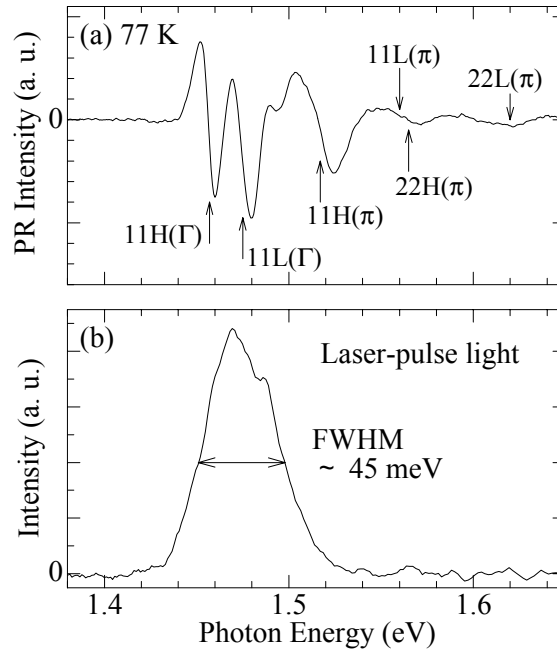


図 5-10. (a) 77 K における(1,30)超格子の光変調反射スペクトル。図内の矢印は、スペクトルを形状解析することによって得られた光学遷移エネルギーを示す。(b) 実験に用いたレーザーパルス光のスペクトル。

された試料で分光を行わなければならない。特に共鳴効果に関しては、ポンプ光の波長を固定しておいて、試料から反射されたプローブ光のみをスペクトル分解することによって探る必要があると思われる。そこで 77 K に試料を冷却し、スペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定[75,76]を行った。このスペクトル分解反射型ポンプ・プローブ分光法とは、試料から反射されてきたプローブ光を分光器で分光し、検出波長を選択することによっておこなわれる分光法である。なおこの測定で得られる信号は非常に微弱なので、時間遅延変調法を組み合わせることによって、時間分解反射率変化の時間微分信号を測定した。

図 5-10(a)は、77 K における(1,30)超格子の光変調反射スペクトルを示している。矢印は、この光変調反射スペクトルを形状解析し、有効質量近似によって得られたミニバンド構造と比較することにより得られた(1,30)超格子での光学遷移エネルギーを示している。ここで、11H(L)は、第一電子ミニバンドと第一重い(軽い)正孔ミニバンドとの間での遷移を意味している。Γとπは、それぞれブリルアンゾーンセンターおよびゾーンエッジでの遷移であることを示している。図 5-10(b)は、実験に用いたレーザーパルス光のスペクトルである。この図は、レーザーパルス光のエネルギーが 11H(Γ)-11H(π)間のエネルギー領域にあることを示している。

図 5-11(a)は、プローブ光をスペクトル分解していない状況で得られた 77 K における(1,30)超格子の時間分解反射率変化の時間微分信号である。ポンプ光強度が 300 mW の場合、およ

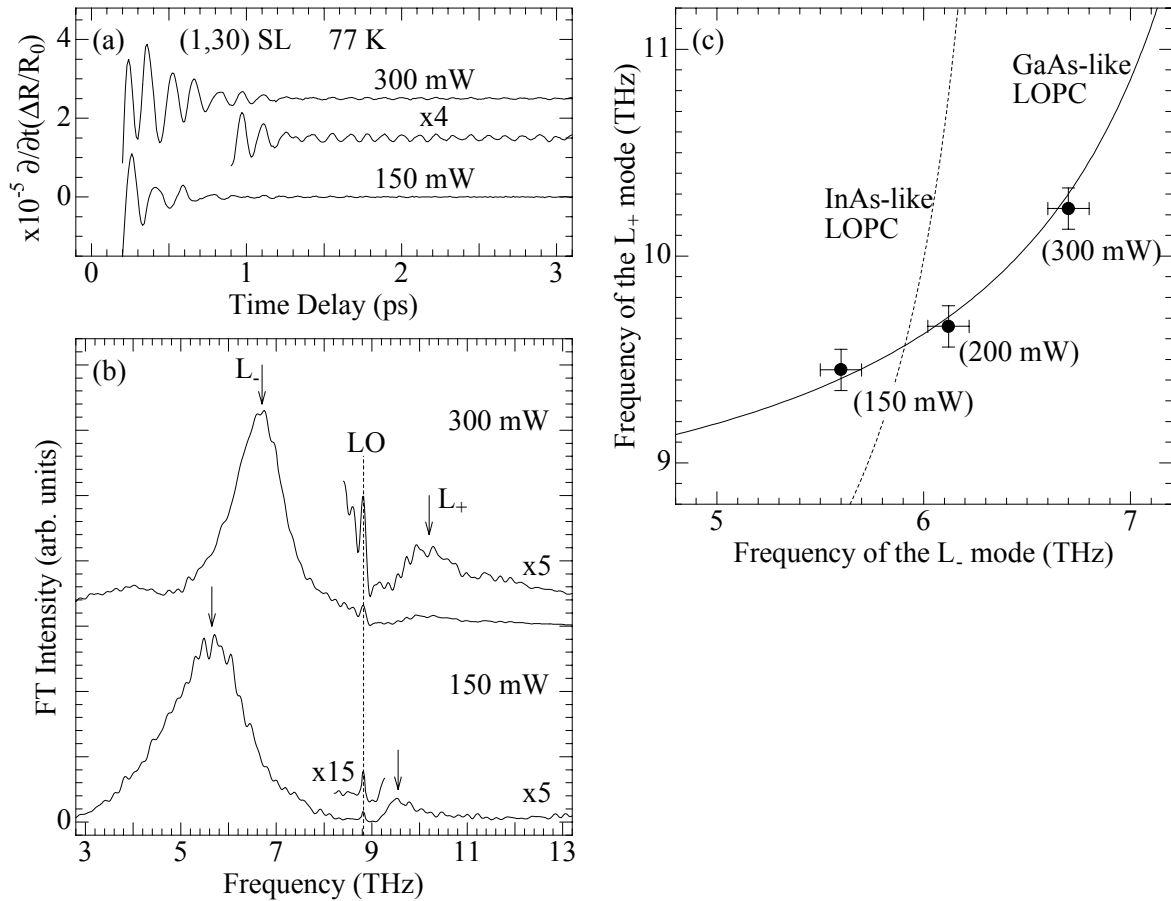


図 5-11. (a) 77 K におけるポンプ光強度 300 mW および 150 mW での(1,30)超格子の時間分解反射率変化の振動プロファイル。(b) (a)のフーリエ変換スペクトル。(c)  $L_-$ モードの振動数の関数としてプロットした  $L_+$ モードの振動数。黒丸は、ポンプ光強度を変化させることによって得られた  $L_-$ および  $L_+$ モード振動数を示す。実線と破線は、それぞれ式(5-1)を用いて計算された GaAs 型 LOPC モードおよび InAs 型 LOPC モードの分散関係。括弧内の数字は、ポンプ光の強度を示す。

び 150 mW の場合共に、時間領域信号に早く減衰するモードと遅く減衰するモードとの両方が観測されている。早く減衰するモードの減衰時間は、ポンプ光強度とともに変化している。このことは、早く減衰するモードの減衰時間が光生成キャリア密度に大きく依存することを示唆している。

これら観測されたモードが GaAs 型 LOPC モードであるかの確認を行うために、まず図 5-11(a)の時間領域信号に対してフーリエ変換を行った。その結果が図 5-11(b)である。8.8 THz に観測されているモードは、GaAs 型 LO フォノンである。このモードに加え、ポンプ光強度が増大するに従い、その振動数が高くなる二つのモードが観測されている。これら観測されたモードの振動数を GaAs 型 LOPC モードおよび InAs 型 LOPC モードの分散関係と比較しているのが図 5-11(c)である。実線は、式(5-1)と(5-2)で表される LOPC モードの分散関係によって得られる上分枝 LOPC( $L_+$ )モードの振動数を、 $\omega_p$  を媒介変数とすることにより  $L_-$ モードの振動数の関数としてプロットしたものである。また黒丸は、図 5-11(b)で  $L_+$ とラベルされたモー

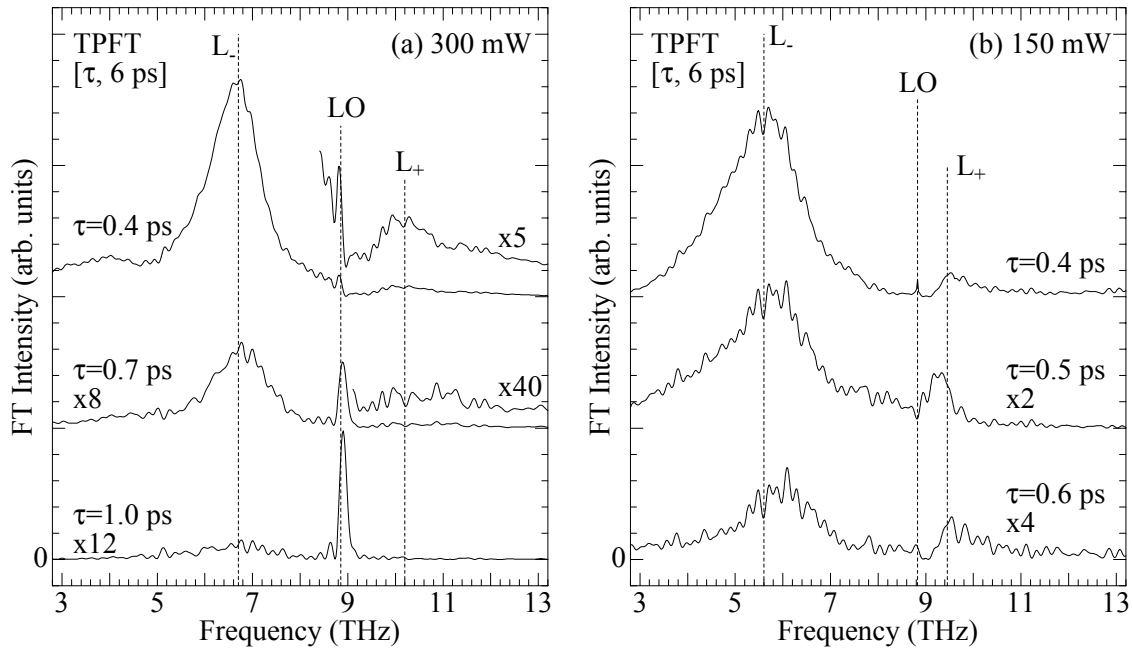


図 5-12. (1,30)超格子におけるポンプ光強度(a) 300 mW および(b) 150 mW での時間分割フーリエ変換スペクトル。τは、フーリエ変換を開始した時刻を示す。

ドの振動数を  $L$  とラベルされたモードの振動数の関数としてプロットしたものである。黒丸は、GaAs 型 LOPC モードの分散関係とよい一致を示している。この結果は、観測されたモードが GaAs 型  $L_+$  モードおよび  $L_-$  モードであることを示している。ポンプ光強度が 300 mW の場合、図 5-11 に示されている GaAs 型  $L_+$  モードのフーリエ変換スペクトルの半値幅は、 $L_-$  モードのフーリエ変換スペクトルの半値幅より広い。一方、ポンプ光強度が 150 mW の場合、 $L_-$  モードの半値幅の方が  $L_+$  モードの半値幅よりも広がっている。これらは、 $L_+$  モードと  $L_-$  モードの減衰時間がポンプ光強度に強く依存していることを示している。 $L_+$  モードおよび  $L_-$  モードの減衰時間を詳細に調べるため、ポンプ光強度が 300 mW および 150 mW の場合における時間分解反射率変化に対して時間分割フーリエ変換を行った結果が図 5-12 である。ポンプ光強度が 300 mW の場合、 $L_+$  モードの減衰時間は 0.13 ps であり、 $L_-$  モードの減衰時間 0.27 ps よりも早い。一方、ポンプ光強度が 150 mW の場合、 $L_-$  モードの減衰時間は 0.18 ps で、この値は  $L_+$  モードの減衰時間 0.55 ps より小さい。Katayama ら[77]によると、 $L_+$  モードの減衰時間  $T_2^{L+}$  および  $L_-$  モードの減衰時間  $T_2^{L-}$  は、次式で表される。

$$\frac{1}{T_2^{L\pm}} = \frac{S_{ph}^{L\pm}}{T_2^{LO}} + \frac{1 - S_{ph}^{L\pm}}{2\langle\tau\rangle_\infty} \quad [\text{with } S_{ph}^{L\pm} = \frac{\pm\omega_{L\pm}^2 \mp \omega_p^2}{\omega_{L+}^2 - \omega_{L-}^2}] \quad (5-5).$$

ここで  $T_2^{LO}$  と  $\langle\tau\rangle_\infty$  は、それぞれ GaAs 型 LO フォノンの減衰時間およびキャリアの運動量緩和時間である。 $S_{ph}^{L\pm}$  は、フォノン強度(phonon strength)と呼ばれる、散乱過程におけるフォノンの寄与の大きさを示す量であり、この値が 1 に近いと LOPC モードの減衰時間は GaAs 型 LO

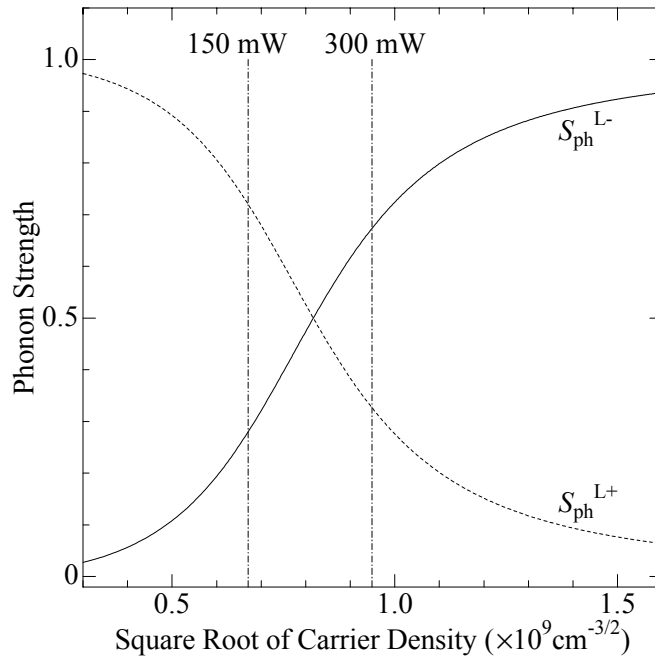


図 5-13. キャリア密度の 2 乗根の関数として計算された GaAs 型 LOPC モードのフォノン強度(式(5-5)の  $S_{\text{ph}}^{L\pm}$ )。実線と破線は、それぞれ  $L_+$ モードおよび  $L_-$ モードのフォノン強度を示す。一点鎖線は、各ポンプ光強度に対応した光生成キャリア密度の 2 乗根を示す。

フォノンの減衰時間に支配される。一方、フォノン強度の値が 0 に近いと、LOPC モードの減衰時間は、キャリアの運動量緩和時間に支配される。一般に、キャリアの運動量緩和時間の値は、サブ ps のオーダーである。それに対して時間分割フーリエ変換スペクトルから見積もった(1,30)超格子における GaAs 型 LO フォノンの減衰時間は、3.2 ps である。図 5-13 に、式(5-5)を用いて計算されたフォノン強度のキャリア密度の 2 乗根依存性を示す。図内の一点鎖線は、各ポンプ光強度における光生成キャリア密度に相当する。ポンプ光強度が 300 mW の場合、 $L_-$ モードのフォノン強度は、 $L_+$ モードのフォノン強度よりも大きい。このことは、 $L_-$ モードの減衰時間は  $L_+$ モードの減衰時間に比べて、より強く GaAs 型 LO フォノンの減衰時間に支配されていることを示している。このため  $L_-$ モードの減衰時間の方が  $L_+$ モードの減衰時間より長くなったと考えられる。一方、ポンプ光強度が 150 mW の場合、 $L_+$ モードのフォノン強度は、 $L_-$ モードのフォノン強度よりも小さい。このため  $L_+$ モードの減衰時間の方がより強く GaAs 型 LO フォノンの減衰時間の影響を受けてしまい、 $L_+$ モードの減衰時間より長くなったと考えられる。

図 5-14 は、スペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定によって得られたさまざまなプローブ光エネルギーにおける時間分解反射率変化の時間微分信号である。振動プロファイルの振幅は、プローブ光のエネルギーによって大きく変化する。一方、その減衰時間は、プローブ光のエネルギーにほとんど依存していない。図 5-15 は、プローブ光のエネルギーを関数と

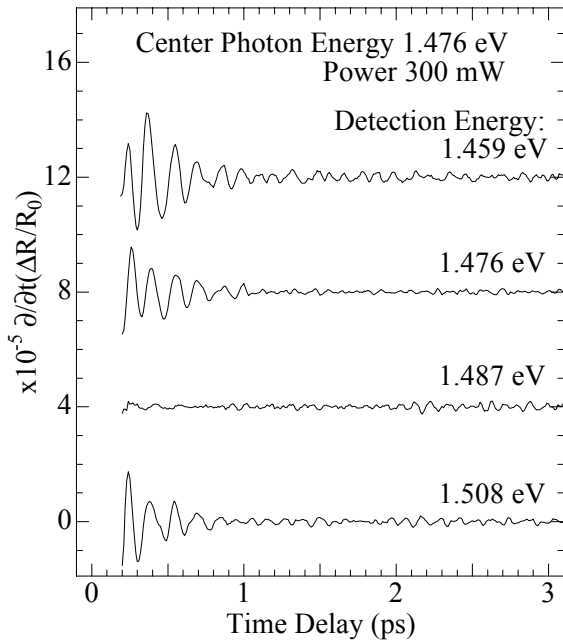


図 5-14. スペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定によって得られた、さまざまなプローブ光エネルギーにおける(1,30)超格子の振動プロファイル。

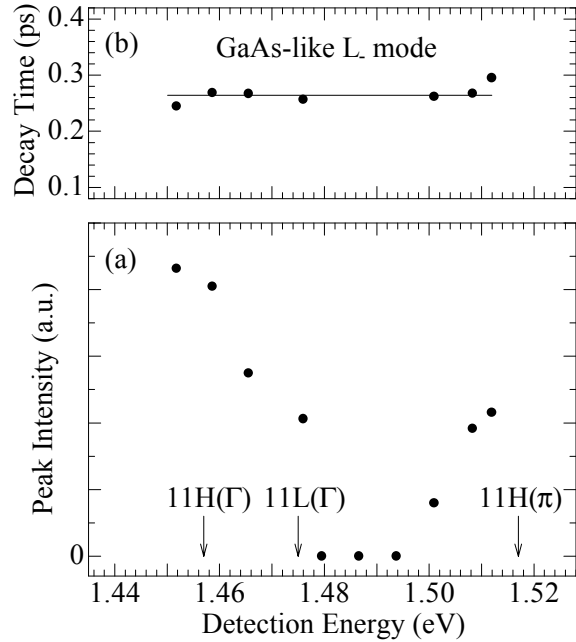


図 5-15. プロブ光エネルギーの関数としてプロットした(a) スペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定によって得られた GaAs 型 L モードのフーリエ変換スペクトルのピーク強度および(b) GaAs 型 L モードの減衰時間。図内の矢印は、図 5-10(a)に示されている光変調反射スペクトルを形状解析することによって得られた光学遷移エネルギーを示す。

して、Lモードのフーリエ変換スペクトルのピーク強度および減衰時間をプロットしたものである。なおL<sub>+</sub>モードに関しては、その信号強度が微弱なためスペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定では検出できなかった。また図内の矢印は、(1,30)超格子のΓ点またはπ点における光学遷移エネルギーを示している。Lモードのピーク強度は、これら特異点近傍で増強されている。それゆえ、Lモードの強度の増強は、超格子のミニバンド構造を反映した共鳴効果によって引き起こされていると考えられる。

上で述べたように、Lモードの強度がプローブ光のエネルギーによって大きく変化するのに対し、その減衰時間は、プローブ光のエネルギーに対してほとんど依存せず、ほぼ 0.27 ps で一定である。n 型 GaAs バルク結晶では、プローブ光のエネルギーが基礎遷移エネルギーから高エネルギー側に外れるにしたがって、Lモードの減衰時間が短くなることが知られている[76]。つまり(1,30)超格子におけるLモードの減衰時間の振る舞いは、GaAs バルク結晶中のLモードの振る舞いと大きく異なる。Lモードの減衰時間のプローブ光エネルギー依存性は、伝導帯でのキャリア-キャリア散乱に起因すると考えられている[76]。それゆえ、(1,30)超格子でもLモードの減衰時間は、キャリア-キャリア散乱を反映していると考えられる。反射



型ポンプ・プローブ測定では、プローブ光を試料に対して垂直に入射し、超格子の積層方向と平行な波数ベクトルを有するキャリアからの信号を検出している。(1,30)超格子における積層方向に沿った電子ミニバンド構造の幅は、たかだか 60 meV 程度であり、バルク結晶の伝導帯幅に比べて非常に限られている。現在のところ、ミニバンド幅が制限されていることによってキャリアキャリア散乱に対して何らかの抑制が働き、(1,30)超格子中の  $L_+$ モードの減衰時間がプローブ光エネルギーに対してほとんど依存しなくなったのではないかと考えている。

#### 5-4. まとめ

InAs/GaAs 歪超格子を試料として、障壁層中の LO フォノンと光生成キャリアのプラズマ振動との結合モードに対する研究を行った。反射型ポンプ・プローブ測定を行うことにより(1, $m$ )超格子において、コヒーレント GaAs 型 LO フォノン・プラズモン結合(LOPC)モードが検出された。このことは、超格子全体に電子包絡波動関数が広がっていることを明確に示す現象である。GaAs 型 LOPC モードの振動数は、レーザーパルス光の強度とエネルギーとの両方に対して依存する。こうした依存性は、光生成キャリア密度のレーザーパルス光の強度とエネルギーとの両者に対する依存性を考慮した LOPC モードの振動数に対するモデルによって説明できる。観測された  $L_+$ モードおよび  $L_-$ モードの減衰時間は、共にポンプ光強度に対して顕著に変化する。この現象は、LOPC モードのフォノン強度を考慮することにより説明できる。スペクトル分解反射型ポンプ・プローブ測定から、 $L_-$ モードの検出過程に対する共鳴効果がミニバンド特異点近傍で発現することが分かった。 $L_-$ モードの減衰時間は、バルク結晶試料とは異なり、プローブ光のエネルギーに対してほとんど依存しない。本研究で見出されたこれらの現象は、超格子のミニバンド状態と密接に関連するものである。このことは、ミニバンドを形成している超格子でのキャリアダイナミクスを研究する上で、コヒーレント LOPC モードをプローブとすることが非常に有効な手段であることを示している。