

第 2 章 超高速分光法および解析手法

2-1. コヒーレントフォノンの超高速分光

コヒーレントフォノンを測定するためのフェムト秒パルスレーザー光を用いた超高速分光法に関しては、これまでいくつか提案されている。それらを大きく分類すると、コヒーレントフォノンから発生する電磁波を検出する方法[21,22]とコヒーレントフォノンによる光学定数の時間変化をプローブ光により検出する方法とに分けることができる。このうち THz 電磁波を測定するという方法で検出されるモードは、電磁波と結合しやすいフォノンであり、電磁波を発生しないモードには適用できない。もう一方の光学定数の時間変化をプローブ光により検出する方法は、さらに四光波混合法と反射型あるいは透過型ポンプ・プローブ法との二つに分類することができる。これらのうち四光波混合法では、二つのポンプ光を入射することによって、物質内に過渡的な回折格子を発生させる。そしてこの回折格子により回折されたプローブ光を測定することで、コヒーレントフォノンの信号が検出される。この方法は、レーザーパルス光に対して透明な物質におけるコヒーレントフォノンの検出に用いられる[7-11]。本研究では、半導体超格子におけるコヒーレントフォノンと光生成キャリアの空間分布との関係を解明することを目的としているので、レーザーパルス光に対して不透明な物質にも適用できる反射型ポンプ・プローブ分光法を採用した。この方法では、ポンプ光照射によって生じた反射率変化をプローブ光を用いて測定することにより、コヒーレントフォノンの信号が検出される。コヒーレントフォノンによる時間分解反射率変化は、定常状態の反射率に比べて非常に微弱(10^{-4} 以下)なので、信号対雑音強度比(S/N 比)のよい信号を得るために、一般的な反射型ポンプ・プローブ分光法にさまざまな手法を組み合わせることで検出を行った。このような反射型ポンプ・プローブ分光法で得られる信号は、時間領域の信号である。しかもその信号は、一般に複数の振動モードによって構成されている。そのため検出されたコヒーレントフォノンの信号を解析するためには、単にフィッティングに頼るのではなくフーリエ変換に代表されるさまざまな手法を用いる必要がある。本研究では、後節で述べる Cole-Cole プロットをコヒーレントフォノンの研究に対して初めて採用することにより、複数のモードで構成されたコヒーレントフォノンの振動プロファイルの初期位相に対する解析に成功した[23]。

この章では、まず最初に本研究で用いたさまざまな測定手法について紹介し、その後、実験で得られた時間領域信号の解析に用いた手法について述べる。

2-2. 反射型ポンプ・プローブ分光法によるコヒーレントフォノンの測定

本節では、まず最初に全ての測定の基本となる反射型ポンプ・プローブ分光法について述べた後、より S/N 比のよいコヒーレントフォノンの信号を得るために用いた手法に関する説明を行う。

2-2-1. 反射型ポンプ・プローブ分光法

本研究では、前節で述べたようにコヒーレントフォノンの測定方法として、フェムト秒パルスレーザー光を用いた反射型ポンプ・プローブ分光法を採用した。図 2-1 は、測定系の概略図である。フェムト秒パルスレーザー光源には、チタンサファイヤ・パルスレーザーシステム(Spectra-Physics 社製 Broad-Band Tsunami)を用いた。このレーザーシステムには、内部ミラーを交換することなしに広い波長領域(700-950 nm)でレーザー光のパルス発振が可能であるという、通常のチタンサファイア・フェムト秒パルスレーザーシステムにはない特徴がある。レーザーシステムから出射されたパルス光は、まず分散プリズム対を通過した後、ビーム・スプリッターで、コヒーレントフォノンを生成するために用いられるポンプ光と生成されたコヒーレントフォノンによる信号を検出するためのプローブ光とに、それぞれ 10:1 の強度比で分割される。これらのうちポンプ光は、周期 2 kHz でチョッピングされた後、試料に照射される。一方、プローブ光は、ステッパースとリトロリフレクターとからなる光学遅延回路を通過した後、その一部をリファレンス光として分けられてから試料表面に到達する。この光学遅延回路とは、ステッパースを距離 l だけ矢印の方向に後退させることによりプローブ光とポンプ光との間に時間遅延 $\tau=2l/c$ (c :光速)を与える装置である。試料から反射された光の強度 $I_A(\tau)$ は、Si-pin フォトダイオード A で検出される。なお、試料表面で散乱されたポンプ光は、プローブ光の検出の際、雑音の原因となるので、それを取り除く必要がある。そこで、ポンプ光の偏光方向に対して垂直になるようにプローブ光の偏光方向を回転させ、その偏光方向の光のみを検出できるようにした。図 2-1 内の偏光子と $1/2$ 波長板は、そのような目的を達成するために導入された光学素子である。このようにして検出された反射光の強度と測定しようとしている時間分解反射率変化 $\Delta R(\tau)/R_0$ とは、次式で結び付けられる。

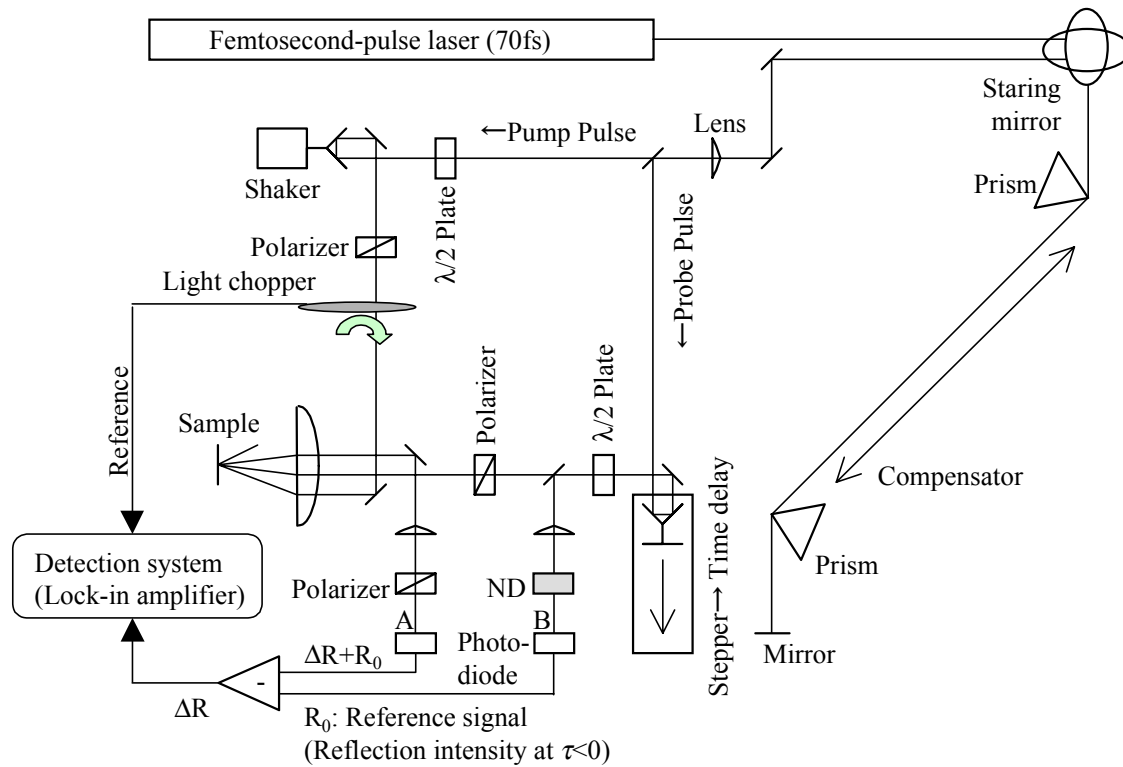


図 2-1. 反射型ポンプ・プローブ分光システムの概略図。

$$\frac{\Delta R(\tau)}{R_0} \equiv \frac{R(\tau) - R_0}{R_0} = \frac{\frac{I_A(\tau)}{I_0} - \frac{I_B}{I_0}}{\frac{I_B}{I_0}} = \frac{I_A(\tau) - I_B}{I_B} \quad (2-1).$$

ここで、 I_0 は試料に照射される直前でのプローブ光の強度、 I_B は、Si-pin フォトダイオード B で検出されるリファレンス光の強度である。このリファレンス光強度は、あらかじめポンプ光を当てない状態、すなわち定常状態における試料からの反射光強度 $I_A(\tau < 0)$ と等しくなるように、フォトダイオードの前に設置されたニュートラルデンシティー (ND) フィルターで調整されている。式(2-1)の分子項、すなわち時間分解反射光強度変化 $I_A(\tau) - I_B$ を測定するために、フォトダイオード A とフォトダイオード B とを、お互いの光電流の向きが逆方向になるよう接続し、その二つの信号の差をとることができるようにしてある。このようにして得られた差動入力信号は、電流アンプ (Stanford 社製 Model SR570) で電圧に変換された後、ポンプ光のチョッピング周波数に同期されたロックイン・アンプ (EG&G 社製 Model 5110) で検出される。全てのデータ収集および機器の制御は、パーソナルコンピュータを用いることによって行なわれた。

コヒーレントフォノンを測定するためには、フェムト秒オーダーの高い時間分解能を有す

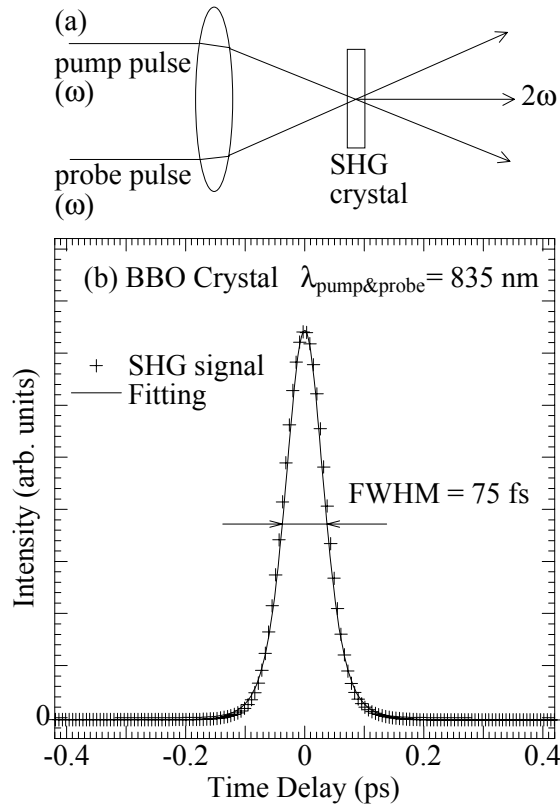


図 2-2. (a) レーザーパルス光の自己強度相関関数の測定方法に対する模式図。(b) 非線形光学結晶として BBO を用いることによって得られた自己強度相関関数。十字印は、BBO 結晶から発生したレーザーパルス光の第 2 高調波の強度を、実線は、Hyperbolic secant 関数を用いたフィッティング結果を示している。

る測定システムが必要である。時間分解能は、用いるレーザーパルス光の時間幅で決定されるので、試料位置におけるレーザーパルス光の時間波形を測定し、あらかじめ調べておく必要がある。本研究では、レーザーパルス光の時間波形を測定する方法として、非線型光学結晶を用いた第 2 高調波発生による強度相関法を採用した[24]。この方法は、図 2-2(a)のように、ポンプ光とプローブ光とをそれぞれ別方向から非線型光学結晶のある一点に絞り込み、それらの光の進む向きと非線型光学結晶の結晶軸とで決定される位相整合条件を満たす方向から放出される第 2 高調波の強度、すなわちポンプ光とプローブ光との間での強度相関関数をプローブ光の時間遅延 τ の関数として測定し、レーザーパルス光の時間波形を求める方法である。この強度相関関数 $G(\tau)$ は、ポンプ光とプローブ光のパルス波形を、それぞれ $I_{pump}(t)$ および $I_{probe}(t)$ とすると次式で与えられる[24]。

$$G(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I_{pump}(t) \cdot I_{probe}(t - \tau) dt \quad (2-2).$$

この式から強度相関法によって得られる時間波形の半値幅 τ_A は、レーザーパルス光のそれ τ_S

より広がることが予測される。レーザーパルス光の波形が Hyperbolic secant 関数の形状に従う場合、 τ_A , τ_S の間には次の関係式が成り立つ[24]。

$$\tau_S \approx 0.648\tau_A \quad (2-3).$$

図 2-2(b)は、時間遅延を関数とした第 2 高調波強度を示す。この図は、非線型光学結晶として、Beta-barium borate (BBO)結晶を用いることによって得られたものであり、十字印と実線は、それぞれ実測値およびそれに対する Hyperbolic secant 関数を用いたフィッティング結果である。この波形の半値幅は 75 fs であるので、式(2-3)を用いることによりレーザーパルス光の半値幅は 49 fs であることが分かる。

コヒーレントフォノンの生成および検出には、試料表面上でできるだけ時間幅の狭いレーザーパルス光を用いる必要がある。図 2-1 に示されているように、反射型ポンプ・プローブ分光法では、数多くの光学素子が使用される。これらの光学素子は、一般に正の分散を示す。不確定性原理によって周波数領域で幅の広い(数十 meV)スペクトル形状を示すフェムト秒レーザーパルス光は、光学素子の持つ波長分散の影響を受ける。例えば、光源から出射されたレーザーパルス光が試料表面に到達するのに要する時間がパルスを構成する各波長成分ごとに異なってくる、という現象が起こる。この現象が発生すると、試料表面上でのパルス光の時間幅は、レーザーシステムからの出射時に比べて広がってしまい、分光システムの時間分解能が劣化される。それだけでなくこの現象は、コヒーレントフォノンの生成を不可能にすることにつながりかねない。これらを防ぐために、コンペンセーターと呼ばれる、二つの分散プリズム(SF10 ガラス)対と 1 つのミラーとからなる光学回路が導入されている。この光学回路は、二つの分散プリズム対の光路に対する挿入量を変化させることによって、あらかじめレーザーパルス光に負の分散を与え、他の光学素子による正の分散を補償し、試料表面でのレーザーパルス光の時間波形を最適化するという役割を果たしている。先に示した図 2-2(b)の時間波形は、そのような手法によって最適化されたときの強度相関関数の形状を示している。

コヒーレントフォノンの生成を議論する場合、その位相を正確に求めることは重要である。そのためには、単に時間分解能を向上させるだけでなく、時間遅延 0 fs、すなわちポンプ光とプローブ光とが同時に試料面に到達する場合に対応するステッパーの位置を正確に決定することも必要である。式(2-2)によると、強度相関関数は、時間遅延 0 fs で最大となる。そこで本研究では、前に述べた強度相関関数が最大値を示す時のステッパーの位置 l_0 を時間遅延の原点に対応させた。

2-2-2. 時間遅延変調法による時間分解反射率変化の時間微分信号測定

本章の最初でも触れたように、コヒーレントフォノンによる時間分解反射率変化は、非常に微弱な信号である。しかも反射型ポンプ・プローブ法によって検出されるコヒーレントフォノンの信号は、電子系の応答に伴う反射率変化の上に重畳している成分として得られる。一例として、図 2-3(a)に、n 型 GaAs 結晶における時間分解反射率変化を示す。時間遅延 0 fs で急激に立上がり、その後ゆっくりと指数関数的に減衰していく反射率変化が電子系の応答による信号である。その信号の上に、微弱な振動構造が観測されている。これがコヒーレントフォノンによる時間分解反射率変化である。このコヒーレントフォノンによる振動構造を感度よく検出するためには、電子系の応答に起因する反射率変化の信号強度を、何らかの手法を用いて減衰させる必要がある。一般に、電子系の応答による時間分解反射率変化は、フォノンの振動と比べると非常に遅いので、検出された信号全体を時間微分することによってコヒーレントフォノンの信号を効率よく引き出すことができる。図 2-3(b)は、図 2-3(a)の信号に対して、数値微分を行った結果である。この微分操作によって、電子系の応答による信号は、大幅に減衰されている。ところが数値微分を行っても、一般的には S/N 比のよい信号が得られない。実際、図 2-3(b)に示されている信号の S/N 比は、微分する前の信号に比べて大幅に劣化している。このような数値計算によってではなく、時間遅延変調法を用いることによって時間微分という操作が達成され、S/N 比のよい信号が実験的に直接得られることが知られている[25-27]。ここでは時間遅延変調法の原理について説明をおこなう。

図 2-1 に示されているシェーカーと呼ばれるマイクロ加振器を、振幅 Δa_0 、振動数 ν_s で駆動させたとする。するとポンプ光の光路長が周期的に変化するため、ポンプ光とプローブ光との間での光路差で決定される時間遅延 τ が変調される。このシェーカーの振動によって引き起こされる時間遅延変調 $\Delta\tau(t)$ は、次式に従う。

$$\begin{aligned}\Delta\tau(t) &= \Delta\tau_0 \cos(2\pi\nu_s t + \phi_{\text{shaker}}) \\ \Delta\tau_0 &= 2\Delta a_0 / c\end{aligned}\tag{2-4}$$

ここで、 ϕ_{shaker} と c は、それぞれ振動の初期位相および光速を示す。この時間遅延変調によって、時間遅延 τ における時間分解反射率変化にも変調がかかり、それは次式で近似できる。

$$\Delta R(\tau + \Delta\tau) \approx \Delta R(\tau) + \frac{\partial \Delta R(\tau)}{\partial \tau} \Delta\tau(t)\tag{2-5}$$

この時間分解反射率変化をシェーカーの振動数に同期されたロックイン・アンプによって検出したとすると、検出される信号 $S(\tau)$ は、次式で表される。

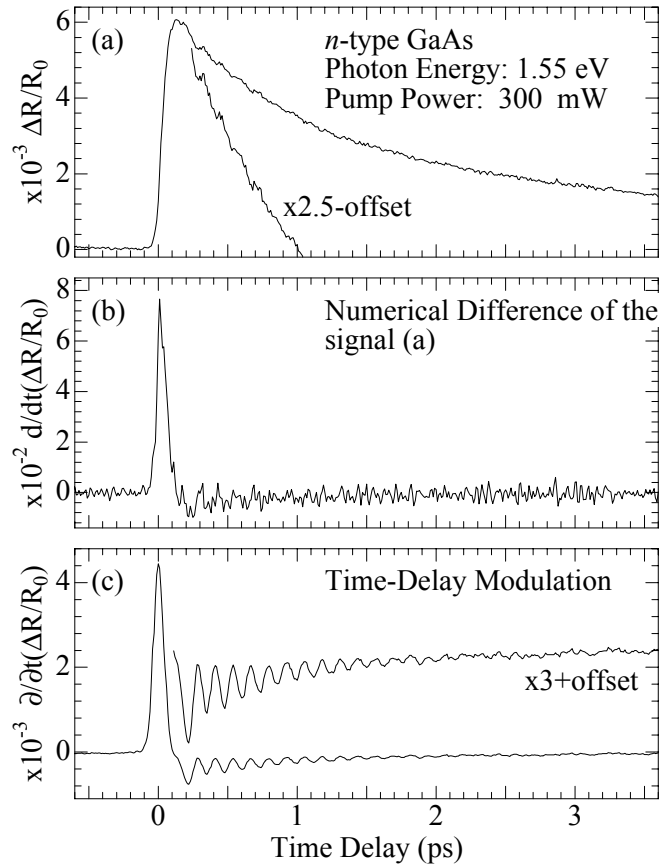


図 2-3. (a) n 型 GaAs における時間分解反射率変化。(b) (a)の時間分解反射率変化を数値微分することによって得られた波形。(c) 時間遅延変調法を用いることによって得られた n 型 GaAs における時間分解反射率変化の時間微分信号。

$$\begin{aligned}
 S(\tau) &= \frac{1}{T} \int_0^T \Delta R(\tau + \Delta\tau) \cdot \cos(2\pi\nu_s t + \phi_{\text{lock-in}}) dt \\
 &\approx \frac{\Delta\tau_0}{2} \frac{\partial \Delta R(\tau)}{\partial \tau} \cos(\phi_{\text{shaker}} - \phi_{\text{lock-in}})
 \end{aligned}
 \tag{2-6}$$

ここで、 $\phi_{\text{lock-in}}$ はロックイン・アンプの位相である。また T は、ロックイン・アンプの時定数でシェーカーの振動周期よりも十分長い時間である。式(2-6)は、 $\phi_{\text{lock-in}} = \phi_{\text{shaker}}$ となるようにロックイン・アンプの位相を調整すれば、時間分解反射率変化の時間微分信号が検出できることを明確に示している。

次に実際の実験の手順について説明する。前で述べたように、この時間遅延変調法による時間分解反射率変化の時間微分信号測定の際、ロックイン・アンプはシェーカーの振動数に同期させなければならない。さらに、シェーカーの振動周期は、ロックイン・アンプの時定数(0.1 msec~1.0 sec)に比べて十分短くさせる必要がある。そこでこの測定を行う際、図 2-1 のチョッパーを停止させ、代わりにファンクションジェネレーター(Wavetek 社製 Model 25)が

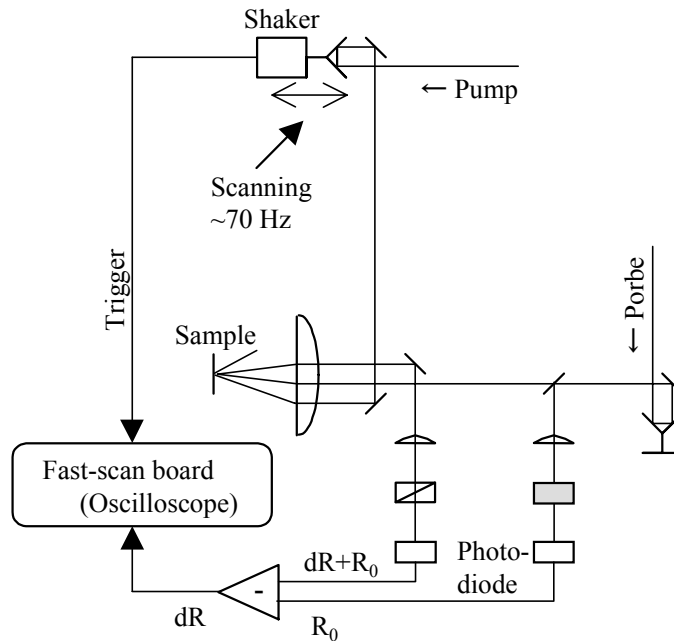


図 2-4. ファースト・スキャンシステムを組み込んだ反射型ポンプ・プローブ分光システムの模式図。

ら 650 Hz の正弦波を送ることによりシェーカー (Brüel & Kjaer 社製 Model 2706) を駆動した。図 2-3(c)は、この時間遅延変調法を用いることによって得られた時間分解反射率変化の時間微分信号を示している。信号波形の形状は、数値微分によって得られた図 2-3(b)の信号波形とほぼ同じである。このことは、時間遅延変調法によって時間分解反射率変化の時間微分信号が実験的に直接得られることを明確に示している。また、時間遅延変調法によって得られた時間微分信号の S/N 比は、数値微分によって得られた図 2-3(b)の信号波形のものより大幅に向上している。そのため、コヒーレントフォノンの振動プロファイルが 2.5 ps まで明確に観測されている。このことは、時間遅延変調法と反射型ポンプ・プローブ分光法とを組み合わせることによって、コヒーレントフォノンを感度よく検出できることを示している。

2-2-3. ファースト・スキャン法による時間分解反射率変化の測定

微弱な信号の S/N 比を向上させるために、複数回の測定を行い、得られたデータを平均化するという手法がよく行なわれる。この手法を採用し、ロックイン・アンプを用いて時間分解反射率変化を測定した場合に要する時間について考察してみる。仮に、ロックイン・アンプの時定数を 1 秒に設定し 10 fs 間隔で時間遅延 0 ps から 10 ps まで測定したとすると、1 回の測定当り最短でも 17 分を要する。そのため、信号の S/N 比を向上させるために複数回の測

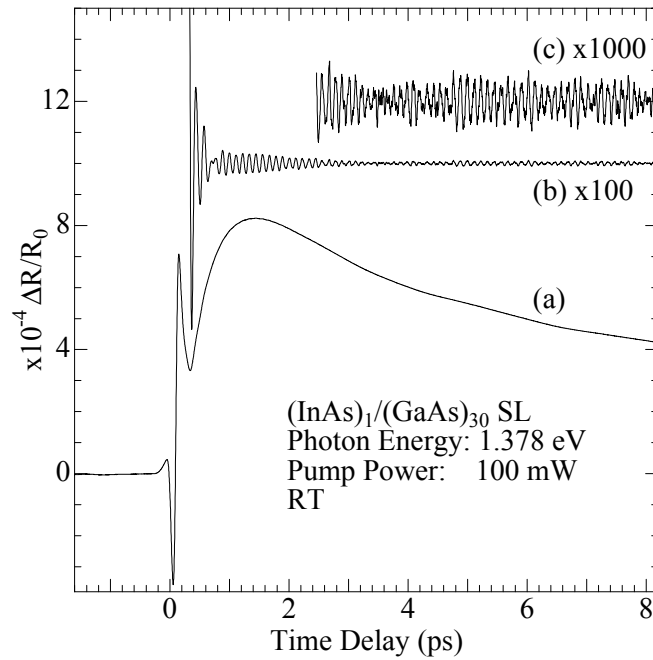


図 2-5. (a) ファースト・スキャン法によって得られた $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_{30}$ 歪超格子における時間分解反射率変化。(b), (c)は、(a)の波形から電子系の応答に起因するバックグラウンド信号を差し引くことによって得られたコヒーレントフォノンの振動プロファイルを示している。

定を行うと、一つのデータを得るのに 1 時間以上もかかってしまう。ここで取り上げるファースト・スキャン法[14,28]は、測定回数とサンプリングレートとを上げることによって S/N 比のよいコヒーレントフォノン信号を取得するために開発された手法である。ファースト・スキャン法の模式図を、図 2-4 に示す。このファースト・スキャン法では、時間遅延発生にステッパーではなく、数十 Hz の振動数で駆動されたシェーカーを使用する。検出された信号は、電流アンプで電圧に変換された後、高分解能(12 bit)かつ高速サンプリングレート(最大 20 MHz)の A/D 変換器を搭載した PCI バスボード(AMO GmbH 社製 AIX-scan PCI-board)に送られる。このボードは、シェーカーの振動数と同期させることにより、デジタルストレージ・オシロスコープとしての役割を果たす計測器であり、データの収集だけでなくコンピュータ内のメモリーへの転送を行う。図 2-5 に、ファースト・スキャン法で測定された時間分解反射率変化を示す。(a)の信号波形は、 $(\text{InAs})_1/(\text{GaAs})_{30}$ 歪超格子(添字: 各構成層の原子層数)の時間分解反射率変化である。なおこの信号を測定するのに要した時間は、20 分である。(a)の信号には、コヒーレントフォノンの信号による振動構造がほとんどみられない。この信号から電子系の応答によるバックグラウンド信号を取り除き拡大したのが(b)および(c)の信号である。いずれの信号にもコヒーレントフォノンによる振動構造が明確に観測されている。特に、(c)の信号の振幅は、 10^{-8} オーダーであるにもかかわらず、その振動プロファイルは、非常に S/N 比がよ

い。本研究では、この手法を用いることにより、最大で 10^{-8} オーダーの時間分解反射率変化を測定することができた。

2-3. 時間分解反射率変化の解析

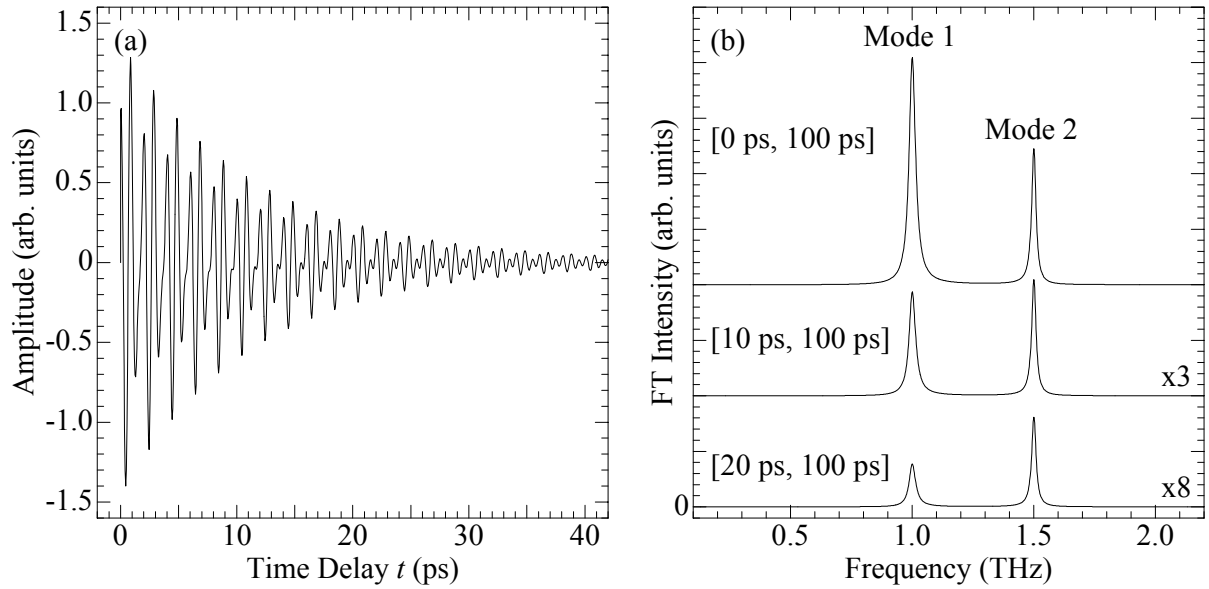
時間分解反射率変化の測定によって得られるコヒーレントフォノンの信号は、振幅、振動数、減衰時間および初期位相といったさまざまな物理情報を含む時間領域の信号である。しかも、一般に得られるコヒーレントフォノンの信号は、複数のモードで構成されている。それゆえ、こうした信号に対してフィッティングを行うことによって得られる物理情報は、かなりの任意性を含んでしまう。本研究では、コヒーレントフォノンの時間領域信号を解析するために、さまざまな手法を適用して、必要な物理情報を引き出した。ここでは、実際に用いた手法とその原理について述べる。

2-3-1. 時間分割フーリエ変換

実験によって得られるコヒーレントフォノンの信号は、時間遅延の関数である。一般にこうした時間領域信号は、フーリエ変換によって周波数領域の信号に変換することができる。ところが図 2-3 が示すように、実際に検出される時間分解反射率変化は、電子系の応答による反射率変化の上にコヒーレントフォノンによる振動構造が重畳されたものとして得られる。さらにコヒーレントフォノンは、正の時間遅延でのみ観測される現象である。以上の点を考慮して、検出信号全体から正の時間遅延成分のみを取り出し、電子系の応答に由来する成分を差し引くことによって得られた N 個 (N ; 任意の整数) のデータ点からなるコヒーレントフォノンの信号 $A(t_k)$ に対し、次式に従ってラプラス-フーリエ変換

$$I(\omega) \equiv \left| \int_0^{\infty} A(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \approx \left| \sum_{k=1}^N A(t_k) \exp(i\omega t_k) \Delta t \right|^2 \quad (2-6).$$

を行った。こうして得られたスペクトルを、以後フーリエ変換スペクトルと呼ぶ。式(2-6)が示すように、このスペクトルの強度は、フォノンの振幅の 2 乗に比例する量であり、強度 $I(\omega)$ は、時間遅延 $t=0$ におけるコヒーレントフォノンの強度に相当する。この考えを拡張すると、次式



$$A(t) = A_1 \exp(-t/\tau_1) \cos(\omega_1 t + \phi_1) + A_2 \exp(-t/\tau_2) \sin(\omega_2 t + \phi_2)$$

図 2-6. (a) 式 $A(t)$ を用いて計算された複数のモードからなる振動プロファイル。(b) (a) のさまざまな時間窓 $[\tau \text{ ps}, 100 \text{ ps}]$ における時間分割フーリエ変換スペクトル。

表 2-1 図 2-6 の振動プロファイルを計算する際に用いたパラメータ

	A_i	$\omega_i/2\pi$ (THz)	ϕ_i ($^\circ$)	τ_i (ps)
Mode 1	1.0	1.0	30	10
Mode 2	0.5	1.5	10	15

$$I(\omega, t_j) \equiv \left| \int_{t_j}^N A(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \approx \left| \sum_{k=j}^N A(t_k) \exp(i\omega t_k) \Delta t \right|^2 \quad (2-7)$$

で定義される時間窓 $[t_j, t_N]$ における時間分割フーリエ変換スペクトルは、時間遅延 t_j におけるコヒーレントフォノンの過渡スペクトルであるとみなすことができる[29,30]。それゆえ、この時間分割フーリエ変換を開始するデータの位置 j を、1,2,3,...と順次ずらしていくことにより得られた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することによりコヒーレントフォノンの減衰時間を見積もることができる。ただし先に述べたように、フーリエ変換スペクトルはフォノンの振幅の 2 乗に相当する量であるから、振動プロファイルの減衰時間は、このプロットによって求められた減衰時間の 2 倍の値となる。図 2-6 は、この時間分割フーリエ変換の概念を表したものである。図 2-6(a) の複数のモードからなる振動構造に対して時間分割フーリエ変換を行うことにより、図 2-6(b) が示すように各モードごとにその強度の時間遅延変化を明確に観測できる。本研究では、この時間分割フーリエ変換を用いることによって、コヒーレントフォノンの減衰時間を見積もった。

2-3-2. Cole-Cole プロットを用いたコヒーレントフォノンの初期位相に対する解析

本節の最初でも触れたように、複数のモードからなる時間分解反射率変化に対してフィッティングを行うことによりそれぞれのコヒーレントフォノンの初期位相を見積もることは、かなりの任意性を含む。こうした問題点を解決するのが Cole-Cole プロットである。ここでは、その原理について述べる。

次式で表される振幅 A_0 、減衰率 γ 、振動数 ω_0 、初期位相 ϕ_0 の関数 $A(t)$ 、

$$A(t) = A_0 \exp(-\gamma t) \cos(\omega_0 t + \phi_0) \quad (2-8).$$

のラプラス-フーリエ変換、

$$\tilde{A}(\omega) = \int_0^{\infty} A(t) \exp(i\omega t) dt \quad (2-9).$$

によって得られる $\tilde{A}(\omega)$ を実部と虚部とに分けると、それぞれの間には次の関係が成り立つ。

$$\left(\operatorname{Re} \tilde{A}(\omega) - \frac{A_0}{4} \cos \phi_0 \right)^2 + \left(\operatorname{Im} \tilde{A}(\omega) + \frac{A_0}{4} \sin \phi_0 \right)^2 = \left(\frac{A_0}{4} \right)^2 \quad (2-10).$$

この式は、 $\operatorname{Im} \tilde{A}(\omega)$ を $\operatorname{Re} \tilde{A}(\omega)$ の関数としてプロットすることによって得られる軌跡が円になることを示している。このプロットは、一般に Cole-Cole プロット (または complex-plane impedance diagram) と呼ばれる[31]。Cole-Cole プロットが示す円の中心と座標原点とを結ぶことによって得られる直線 l_j の傾きは、式(2-8)の初期位相に対応する。このことは、コヒーレントフォノンの初期位相に対する解析が Cole-Cole プロットを行うことにより可能となることを示している。

図 2-7(a)は、図 2-6(a)に示された振動プロファイルのフーリエ変換を Cole-Cole プロットしたものである。この図は、Cole-Cole プロットを行うことにより、複素平面上で各振動モードがそれぞれ独立した円の軌跡として明確に分離されることを示している。また図内の ϕ_j は、それぞれのモードの初期位相に対応している。このことは、Cole-Cole プロットが観測されたモード間での初期位相差を調べるのに有効な方法であることを示している。なお本研究では、時間遅延変調法を用いて時間分解反射率変化の時間微分信号の検出を行っているが、時間微分信号のフーリエ変換 $\tilde{A}'(\omega)$ に対する Cole-Cole プロットは、 $\gamma \ll \omega_0$ が成り立つ場合、次の式に従う[23]。

$$\left(\operatorname{Re} \tilde{A}'(\omega) + \frac{A_0}{4} \sin \phi_0 \right)^2 + \left(\operatorname{Im} \tilde{A}'(\omega) + \frac{A_0}{4} \cos \phi_0 \right)^2 \approx \left(\frac{A_0}{4} \right)^2 \quad (2-11).$$

この式から時間微分信号に対しても、その Cole-Cole プロットが円になることは明らかである。

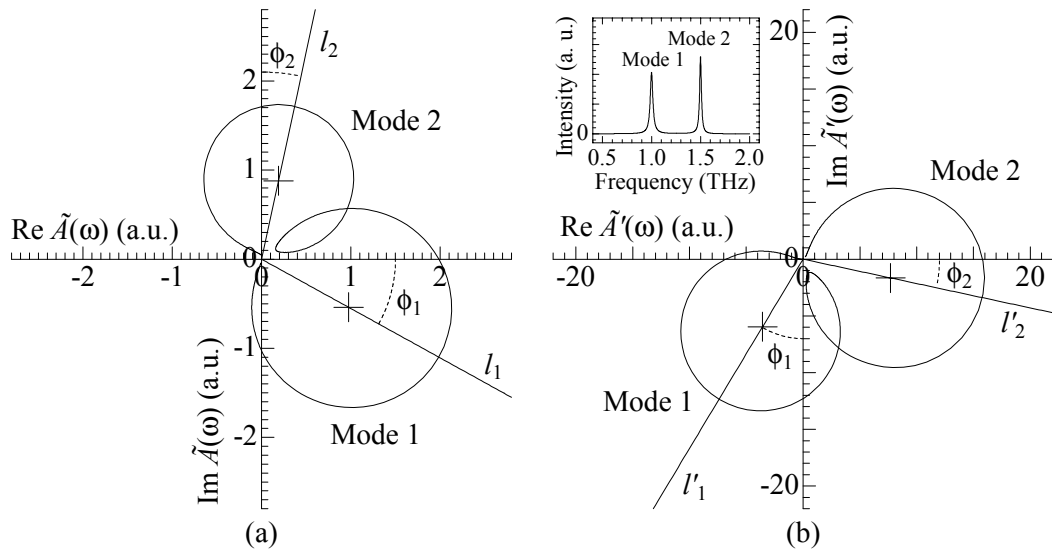


図 2-7. (a) 図 2-6(a)の振動プロファイル $A(t)$ のフーリエ変換 $\tilde{A}(\omega)$ に対する Cole-Cole プロット。 ϕ_j は、各モードの初期位相を示している。また直線 l_j の傾きは、各モードの初期位相に相当する。(b) 図 2-6(a)の振動プロファイルの時間微分波形 $A'(t)$ のフーリエ変換 $\tilde{A}'(\omega)$ に対する Cole-Cole プロット。挿入図は、微分波形のフーリエ変換スペクトルを示している。

図 2-7(b)に、図 2-6(a)に示された振動プロファイルの時間微分波形の Cole-Cole プロットを示す。この図が示すように、振動プロファイルの微分信号に対する Cole-Cole プロットも、図 2-7(a)と同様に円を描く。このことから Cole-Cole プロットは、時間微分信号の初期位相の解析にも適用できる手法であると考えられる。本研究では、この Cole-Cole プロットを用いて、第 4 章で扱う GaSb/AlSb 超格子におけるコヒーレント縦光学フォノンの初期位相を解析した [23]。