

第 1 章 序論

1-1. 本研究の背景

1-1-1. 半導体超格子におけるミニバンド構造とフォノン

半導体超格子(Semiconductor superlattice, SL)とは、ナノメートル・オーダーで制御された異なる種類の半導体薄膜を周期的に積層した物質であり、分子線エピタキシー(Molecular-beam epitaxy, MBE)法などの結晶成長技術を用いることにより作製される人工結晶である[1,2]。半導体超格子では、伝導帯および価電子帯に対して、積層方向に沿った周期的なポテンシャル変調が発生する。これは、超格子を構成する半導体のバンドギャップエネルギーや電子親和力の違いに起因するものである。図 1-1 は、異なる種類の半導体 A, B を周期 D で交互に積層させた超格子におけるポテンシャル構造を模式的に表したものである。図内に示された低ポテンシャル層 A と高ポテンシャル層 B とは、それぞれ量子井戸層および障壁層と呼ばれる。このポテンシャル変調により、電子および正孔に対して、量子効果が発現する。半導体超格子における電子および正孔の特性は、超格子を構成する半導体の種類、各層の膜厚や歪など

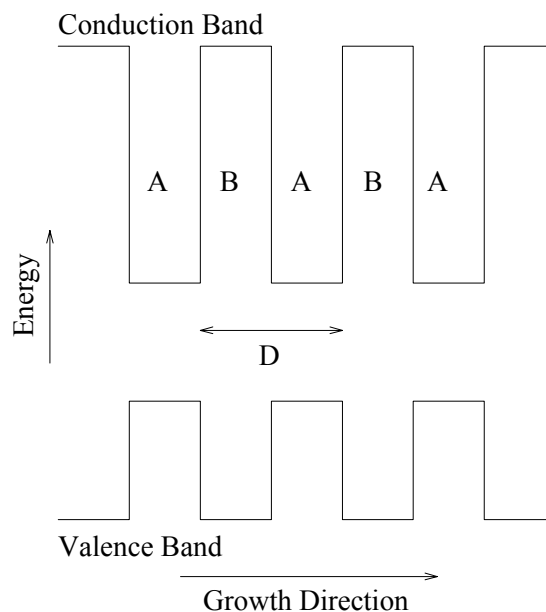


図 1-1. 半導体超格子におけるポテンシャル構造の模式図。横軸と縦軸は、それぞれ超格子の積層方向およびポテンシャルエネルギーを示している。A 層と B 層は、それぞれ量子井戸層および障壁層である。また図内の D は、超格子の周期を示している。

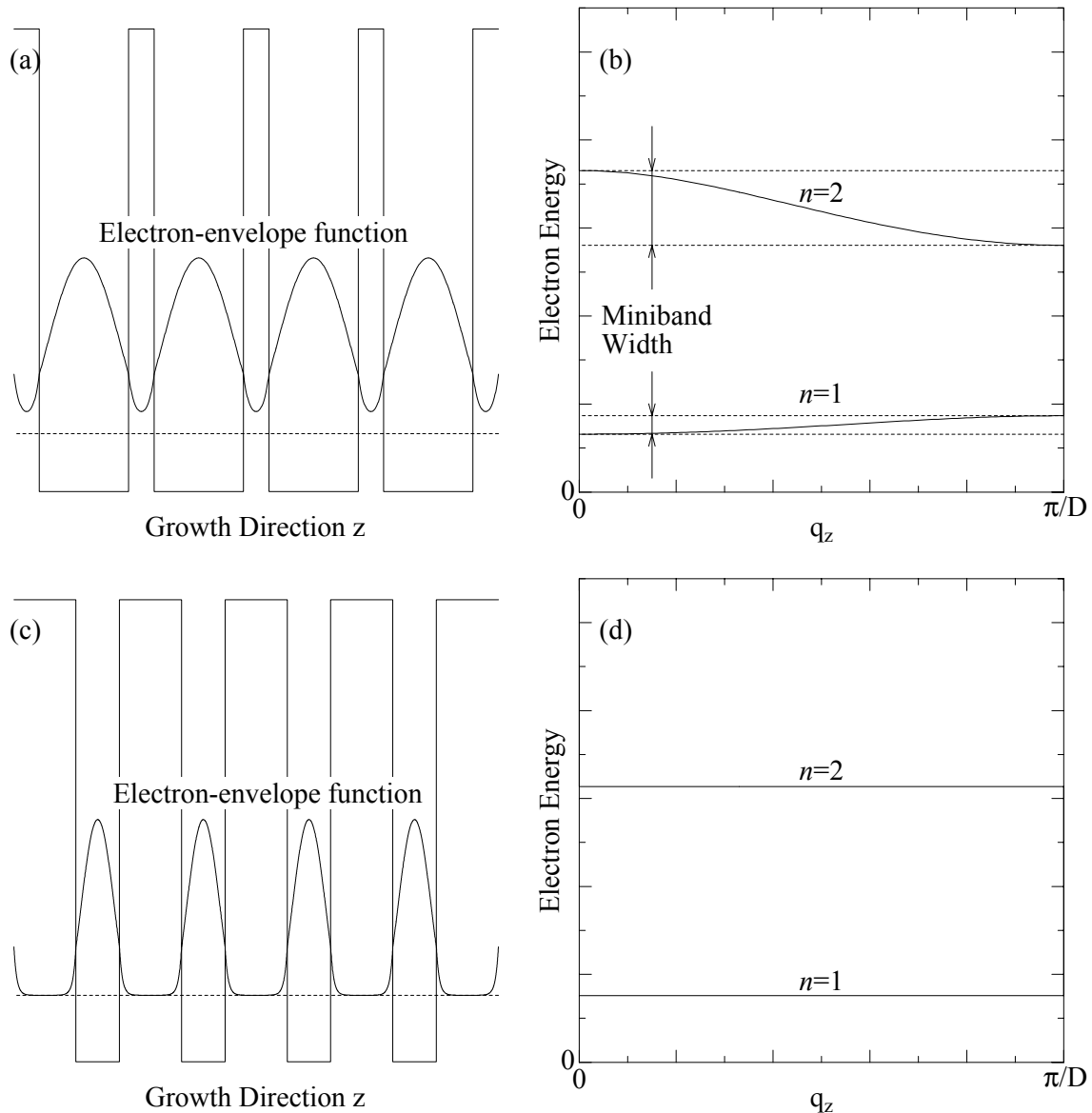


図 1-2. (a) 障壁層の厚さが十分薄い場合の Γ 点における第一電子ミニバンド状態の包絡波動関数。破線は、この電子包絡波動関数の固有エネルギーを示している。曲線は、破線を基準として描かれた電子包絡波動関数を示している。(b) (a)の超格子における電子のエネルギー構造。 n は、量子数を示す。図内の矢印は、電子ミニバンド幅を示している。(c) 障壁層の厚さが十分厚い場合の Γ 点における第一電子ミニバンド状態の包絡波動関数。(d) (c)の超格子における電子のエネルギー構造。

によって大きく変化する。図 1-2 は、電子包絡波動関数と電子のエネルギー構造との量子井戸層および障壁層の層厚に対する依存性を示す模式図である。図 1-2(a)は、量子井戸層の厚さに比べて障壁層の厚さが十分薄い超格子における電子包絡波動関数を模式的に示したものである。図 1-2(a)が示すように、隣り合う量子井戸間での包絡波動関数は、お互いに重なりあっている。この電子包絡波動関数間の重なりは、電子がトンネル効果により超格子層内を積層方向に沿って自由に運動できることを意味している。図 1-2(b)は、このような超格子での電

子の運動量空間におけるエネルギー分散を示している。図が示すように、電子は、超格子の周期 D によって決定されるミニブリルアンゾーン内で、矢印が示す幅に相当する有限のエネルギー幅を持つミニバンド構造という電子状態を形成する。一方、図 1-2(c)は、量子井戸層に比べて障壁層の方が厚い超格子における電子包絡波動関数を模式的に示したものである。この図が示すように、隣り合う量子井戸間での包絡波動関数は、お互いに十分離れ合い、それらの重なりは消失してしまっている。このことは、電子が各量子井戸層内に閉じ込められていることを示している。そのような状態の電子は、図 1-2(b)のようなミニバンド構造を持たず、図 1-3(d)のような離散的なエネルギー状態を形成する。

半導体超格子における格子振動(フォノン)も、電子および正孔の場合と同様に、超格子構造に起因した特徴を示す[3]。図 1-3 は、1次元鎖モデル[4]に基づいて計算された $(\text{GaAs})_6/(\text{AlAs})_6$ 超格子(添字: 単原子層単位での層厚)におけるフォノンの分散関係とバルク結晶(GaAs , AlAs)におけるフォノンの分散関係とを示している。この超格子の場合、積層方向に対して 12 原子層の周期性があるため、一点鎖線で示されたバルク結晶のゾーン端の $1/12$ の位置にミニブリルアンゾーン端が形成される。このミニブリルアンゾーン内に示されている実線は、 $(\text{GaAs})_6/(\text{AlAs})_6$ 超格子におけるフォノンの分散関係を示している。このフォノンの分散関係は、破線で示されたバルク結晶のフォノンの分散関係を折返したような形状を示している。この現象は、ゾーン・フォールディングと呼ばれ、この効果により超格子特有のモードが生じる。図 1-4 は、図 1-3 のゾーンセンター($q_z=0$)における 3 種類のモード(a)-(c)の格子変位パターンを示している。図 1-4 (a)と(b)は、それぞれ AlAs 型縦光学(Longitudinal optical, LO)フォノンおよび 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 フォノンと AlAs 型 LO フォノンは、それぞれ GaAs 層および AlAs 層のみで格子変位を示しており、界面でそれぞれのモードの格子変位が急激に減衰している。このことから、 AlAs 型 LO フォノンと GaAs 型 LO フォノンは、それぞれ GaAs 層および AlAs 層に局在していると考えられる。図 1-4(c)は、第一折返し縦音響(Folded longitudinal acoustic, FLA)フォノンの下分枝モードの格子変位パターンを示している。FLA フォノンの場合、LO フォノンとは異なり、全ての層において格子変位を示している。このことから、FLA フォノンは超格子全体に展開するモードであると考えられる。

先に述べたように、ミニバンド構造を有する超格子中のキャリアは、積層方向に沿って自由に運動できる。それゆえ超格子の積層方向に沿ったプラズマ振動と呼ばれるキャリアの集団振動が発生する。このプラズマ振動は、超格子中の LO フォノンとの間で結合モードを形成することが知られている[3]。このように半導体超格子におけるフォノンは、バルク結晶で見られない特性を有するという点だけではなく、超格子中のキャリアの状態とも密接に関係

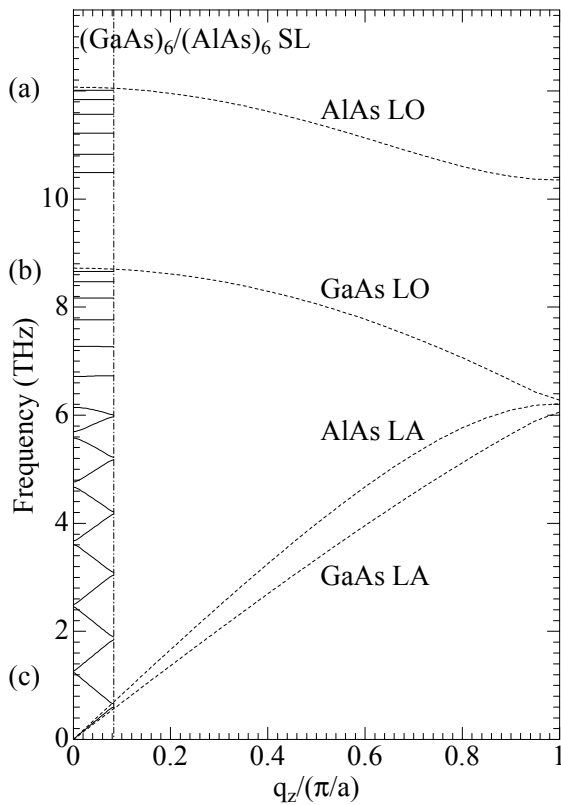


図 1-3. $(\text{GaAs})_6/(\text{AlAs})_6$ 超格子におけるフォノンの分散曲線(実線)と GaAs 結晶および AlAs 結晶におけるフォノンの分散曲線(破線)。一点鎖線は、 $(\text{GaAs})_6/(\text{AlAs})_6$ 超格子のミニブリルアンゾーンの大きさを示す。 π/a は、GaAs 結晶および AlAs 結晶のブリルアンゾーンの大きさを示す。

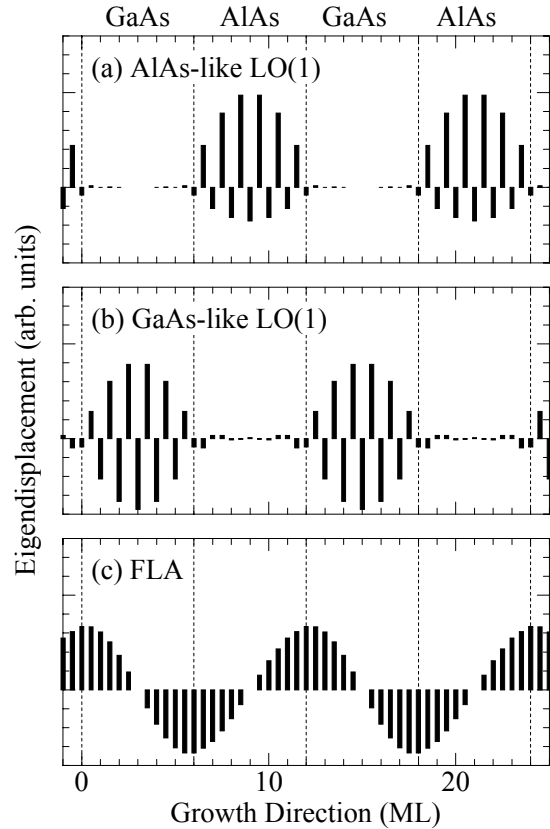


図 1-4. 図 1-3 内の(a-c)のモードのゾーンセンター($q_z=0$)における格子変位パターン。(a) 第一折返し AlAs 型 LO フォノン。(b) 第一折返し GaAs 型 LO フォノン。(c) 下分枝の第一 FLA フォノン。

しているという点でも興味深い。それゆえ、これまでラマン散乱分光法などを用いることにより半導体超格子におけるフォノンの研究が盛んに行なわれてきた[3]。

1-1-2. コヒーレントフォノン

これまで半導体超格子におけるフォノンの研究は、主にラマン散乱分光法を用いることによって行なわれてきた。ラマン散乱とは、入射光としてある単色光を物質に照射した時、入射光がフォノンやプラズモンに代表される素励起と相互作用することで、入射光と異なるエネルギーを持つ光(散乱光)が、ある方向に散乱されるという現象である。それゆえ、ラマン散乱分光法では、入射光と散乱光との間のエネルギー差の関数として、ラマン散乱信号が検出

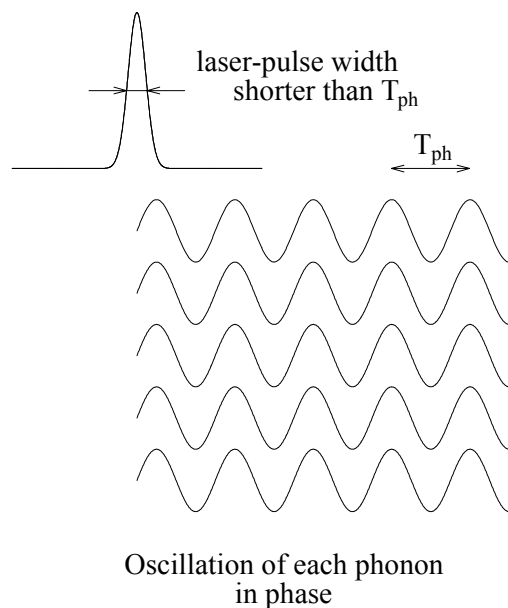


図 1-5. コヒーレントフォノン発生メカニズムを示す模式図。フォノンの振動周期 T_{ph} より短い時間幅のパルス光で励起した場合、全てのフォノンが同時刻で生成されるので、全体として位相が揃う。そのため、フォノンの生成によって誘起される光学定数の時間変化は、コヒーレントなものとなる。従って、フォノンの振動を光学定数の時間変化として検出することが可能となる。

される。このことは、ラマン散乱分光法が振動数領域の分光法の一つであることを意味している。またラマン散乱分光法に代表される従来のフォノン分光法によってフォノンを観測する際、その測定時間は、THz オーダー (10^{12} s^{-1}) であるフォノンの振動数に比べて十分長い。そのため得られる物理情報は、フォノンの状態の時間平均に関係したものであると考えられる。もしフォノンの振動周期オーダーの時間領域で、その振動を直接観測することができれば、フォノンの振動プロファイルを時間の関数として得ることができる。そして、その観測結果は、各時刻におけるフォノンの動的な振る舞いを反映すると考えられる。

近年のレーザー技術の発展により、フェムト秒 ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) オーダーの時間幅を有するレーザーパルス光の発生とその利用が可能となってきた[5]。こうしたフェムト秒パルスレーザー光を半導体に照射することにより、図 1-5 に模式的に示しているように、瞬時に位相の揃ったフォノン集団が生成される。このようにフェムト秒パルスレーザー光照射によって生成される位相の揃ったフォノン集団は、コヒーレントフォノンと呼ばれており、物性物理学の先端的テーマの一つとして近年盛んに研究が行なわれている[6]。レーザーパルス光によって生成されたコヒーレントフォノンの検出には、主にポンプ・プローブ分光法が用いられている。ここで、コヒーレントフォノンの生成に用いているレーザーパルス光をポンプ光といい、コヒーレントフォノンなどの素励起によるある物理量の変化を検出するためのレーザーパルス光をプローブ光という。このポンプ・プローブ分光法は、ポンプ光に対して時間遅れ(時間遅

延)を持ったプローブ光を用い、コヒーレントフォノンなどにより変調された物質の光学定数の時間変化、例えば反射率や透過率の時間変化を時間遅延の関数として検出する方法である。本論文では、ポンプ・プローブ分光法の中で、特にコヒーレントフォノンを測定するための方法をコヒーレントフォノン分光法と呼ぶことにする。このコヒーレントフォノン分光法は、時間領域分光法であるため、フォノンの位相や減衰時間といった従来の分光手法では得ることのできない物理情報を与えるという点で非常に興味深い。また、コヒーレントフォノンの振動プロファイルをフーリエ変換することにより、周波数領域での信号が得られ、従来のラマン散乱分光法によるフォノンの信号と比較することもできる。このことは、コヒーレントフォノン分光法が非常に自由度の高いフォノン分光法であることを示唆している。

コヒーレントフォノンの最初の測定対象となったのは、分子性結晶中における音波モードである[7,8]。その後の超短パルスレーザー技術の発展とともに、誘電体における光学フォノン[9]など、より高振動数のモードも、コヒーレントフォノンとして測定されるようになった。このようなコヒーレントフォノンの初期の研究の対象となった物質は、測定に使用されるレーザーパルス光に対して透明である。Nelson ら[10,11]は、こうした透明物質中でのコヒーレントフォノン生成機構として瞬間誘導ラマン散乱 (Impulsive stimulated Raman scattering, ISRS) 機構というモデルを提唱した。この ISRS 機構は、平衡点で静止していた原子が、レーザーパルス光照射によって、瞬時にその平衡点を中心として振動を開始するというモデルであり、現在でも透明媒質中で生成されるコヒーレントフォノンの生成機構として広く認められている。

引き続いて、レーザーパルス光に対して透明な物質だけではなく不透明な物質、すなわちレーザーパルス光照射によってキャリアが生成されるような物質中のコヒーレントフォノンに対する研究が行なわれるようになった。まず最初に対象となったのは、半金属中の光学フォノン[12]である。Zeiger ら[13]は、光生成キャリアによって生じる原子の平衡点のずれが半金属中でのコヒーレントフォノンを生成させるというモデルを提唱した。このモデルは、変位励起(Displacive excitation of coherent phonon, DECP)機構と呼ばれている。

1990年代に入ると、Cho ら[14]によって、GaAs 結晶中のコヒーレント LO フォノンに関する最初の報告がなされた。その後、LO フォノンとキャリアの集団運動であるプラズモンとが結合したモード[15]などに対する研究も報告されている。GaAs に代表される化合物半導体の表面には、表面欠陥に起因する電場によるポテンシャル湾曲が存在する。Cho ら[14]は、この表面電場を光生成キャリアが遮蔽することによってコヒーレント LO フォノンが生成されるというモデルを提唱した。このモデルは、表面電界遮蔽(Instantaneous screening of surface potential bending, ISSPB)機構と呼ばれている。

近年では、半導体超格子中のコヒーレントフォノンも、測定の対象となっている。Yamamotoら[16]は、1994年にGaAs/AlAs超格子を試料として、コヒーレントFLAフォノンの検出に初めて成功した。Mizoguchiら[17]は、コヒーレントFLAフォノンの生成に用いるポンプ光の波長を変化させることによって、超格子表面層のみを励起した場合と超格子全体を励起した場合との間で観測されるモードが異なることを示し、コヒーレントFLAフォノンの生成および検出過程を議論している。さらにGaAs/AlAs超格子では、コヒーレントGaAs型LOフォノン[18]やコヒーレントGaAs型LOフォノン・プラズモン結合モード[19,20]に対する研究も報告されている。しかしながら、以上で述べた半導体超格子におけるコヒーレントフォノンの研究は、光生成キャリアの空間分布を考慮していない。これまでも述べたように光生成キャリアは、コヒーレントフォノンの生成機構と密接な関係がある。それゆえ、光生成キャリアの空間分布とコヒーレントフォノンとの関係を調べることは興味深いと考えられる。

1-2. 本研究の目的と本論文の構成

前節で述べたように、コヒーレントフォノンの生成機構に対して、これまでさまざまなモデルが提唱されている。これらのモデルは、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よって分類できる。すなわち、コヒーレントフォノンの生成機構は、光生成キャリアが介在するかどうかによって依存する。本研究で対象とする半導体超格子は、これまで主たる研究の対象となってきたバルク結晶と根本的に異なる性質がある。それは、超格子が複数の物質から構成される複合物質であるため、数々の種類の超格子の中には、光学測定に用いるフェムト秒パルスレーザー光に対して透明な物質と不透明な物質との両者から構成された超格子が存在する、という点である。このことは、超格子を構成するそれぞれの層でキャリアの空間分布が異なっている可能性があることを示している。これまで研究の対象となったコヒーレントLOフォノンは、量子井戸層のモードのみ、すなわちレーザーパルス光によってキャリアが生成される層のモードのみである。一方、障壁層内のモードに関しては、本研究に着手した時点では全く注目されていなかった。また、ミニバンド構造を有する超格子中のキャリアは積層方向に沿って自由に運動できるので、障壁層中のLOフォノンとの間で結合モードを形成することが予測できる。しかしながら、障壁層中のLOフォノンとプラズモンとが結合したモードに関する研究は、報告されていなかった。このように本研究を開始した時点では、半導体超格子での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は、まだ明らかではなかった。

半導体超格子では、その周期数を変化させることにより系の有限性を制御できる。こうし

た特性を半導体超格子が有するにも関わらず、系の有限性がコヒーレントフォノンに与える影響は、全く考慮されていなかった。FLA フォノンは、超格子全体に展開するモードなので、こうした系の有限性に対して敏感であると考えられる。前にも述べたように、レーザーパルス光の波長を変えることで、観測されるコヒーレント FLA フォノンのモードは異なってくる。このことは、超格子層内での光生成キャリアの空間分布によって、観測されるモードが変化することを意味している。それゆえ、コヒーレント FLA フォノンの生成過程に対しても光生成キャリアの空間分布が密接に関係していると考えられる。もし周期数の限られた超格子でのコヒーレント FLA フォノンを測定することができれば、その結果は、キャリアを有限な領域で生成させた場合のコヒーレントフォノンの特性に対応すると考えられる。すなわち、有限な領域の光生成キャリアがコヒーレント FLA フォノンの生成にどのような影響を与えるかというコヒーレントフォノンの特性に対する一つの知見を得ることができると考えられる。

本研究では、上で述べた観点から半導体超格子での光生成キャリアの空間分布とコヒーレントフォノンとの関係を明らかにすることを目的とした。特に本研究では、半導体超格子全体に広がったコヒーレント FLA フォノン、半導体超格子の各層に局在したコヒーレント LO フォノンおよびこのコヒーレント LO フォノンとプラズモンとが結合したモード、この 3 種類のコヒーレントフォノンに着目し、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について調べた。

序論を示した第 1 章に続く本論文の構成を、以下に記す。

第 2 章では、実験方法と得られた信号の解析に用いた手法とについて述べる。本研究を行うために、フェムト秒パルスレーザー光を用いた反射型ポンプ・プローブ分光システムを構築した。この分光システムには、最短時間幅 70 fs のレーザーパルス光を用いることにより、フォノンの振動プロファイルを時間領域で測定できるという特徴がある。本研究では、基本となる反射型ポンプ・プローブ分光法に対して、コヒーレントフォノンの信号を感度よく検出するためにさまざまな手法を加えた。この章では、こうした手法について述べる。さらに、コヒーレントフォノンの時間領域信号から振動数、位相、減衰時間といった物理情報を抽出するための解析手法について述べる。

第 3 章では、GaAs/AlAs 超格子のコヒーレント FLA フォノンに対する有限サイズ効果について述べる。先に述べたように、FLA フォノンは超格子層全体に展開するモードなので、超格子層厚の有限性に対して敏感であると考えられる。超格子層の有限性が FLA フォノンの検出過程や減衰時間に与える影響に対して、実験結果とシミュレーション結果とを比較し議論を行う。

第 4 章では、GaSb/AlSb 超格子におけるコヒーレント LO フォノンの生成機構について述べ

る。実験に用いたレーザーパルス光に対して、AlSb 層は透明である。一方、GaSb 層は不透明であり、レーザーパルス光照射によりキャリアが生成される。観測されたコヒーレント LO フォノンの初期位相を詳細に調べることによって得られた結果を基に、コヒーレント LO フォノンの生成機構と光生成キャリアの空間分布との関係を明らかにする。

第 5 章では、InAs/GaAs 歪超格子におけるコヒーレント LO フォノン・プラズモン結合モードの特性について述べる。本研究により、ミニバンド構造を有する超格子では、プラズモンと障壁層中の LO フォノンとの間でコヒーレントな結合モードが形成されることを初めて見出した。この結合モードに対して、そのレーザーパルス光強度およびエネルギー依存性に加えて、プローブ光エネルギー依存性を測定することによって得られた結果を基に、ミニバンド構造が結合モードに与える影響に関して議論を行う。

第 6 章で、本論文の総括を行う。光生成キャリアの空間分布とコヒーレントフォノンとの関係を明らかにした上で、今後のコヒーレントフォノンに対する研究の展望について述べる。