

# コヒーレントフォノンについて

大阪市立大学工学部

溝口 幸司

## 概要

フェムト秒パルスレーザーを半導体や半金属などの実励起キャリアを伴う試料に照射する事によって、その試料中に位相の揃ったフォノンが発生する。このフォノンはコヒーレントフォノンと呼ばれている。コヒーレントフォノンは、ポンプ・プローブ法を用い反射率や透過率の時間変化を見る事で、フォノンによる振動現象を時間領域で直接観測する事ができる。

時間分解4光波混合法で測定される誘電体などの透明試料中のコヒーレントフォノンは、そのコヒーレントフォノンの性質や生成・検出過程については、十分議論されている。しかしながら、フェムト秒パルスレーザーに対して不透明な試料である半導体や半金属などの実励起キャリアを伴う試料におけるコヒーレントフォノンの研究は近年始まったばかりで、黎明期にあると思われる。そのため、実励起キャリアを伴うことによって生成されるコヒーレントフォノンの物理的性質が現在でもあまり良く分かっておらず、赤外やラマン散乱分光法などで観測される通常の熱平衡状態のフォノンとどのように違うのか定かでない。また、このコヒーレントフォノンの生成過程や検出過程についても不明な点が多い。

本ゼミでは、半導体や半金属中に観測されるコヒーレントフォノンを対象とし、現在までに明らかになっている内容を紹介しながら、コヒーレントフォノンの性質、生成・検出機構などについて議論して行きたい。

## 1 はじめに

近年のフェムト秒パルスレーザーの普及は目覚ましいものがあり、非常に多くの研究グループによってフェムト秒パルスレーザーが扱われている。物理サイドにおいても、ここで紹介するコヒーレントフォノンの研究以外に、キャリアダイナミクスの研究、レーザーアブレーションに関する研究、分子・原子の表面吸着に関する研究などなど、多岐に渡ってフェムト秒パルスレーザーが用いられている [1, 2]。その一つの理由に、励起結晶に安定で丈夫な Ti をドープしたサファイア結晶 (Ti:sapphire) が用いら

れ、研究レベルで非常に扱い易くなった事が挙げられる。我々もその恩恵を得、6年程前にフェムト秒パルスレーザーを用いコヒーレントフォノンの研究を開始した次第である。

最近では、Ti:sapphire 結晶の厚さを薄くし Ti のドープ濃度を濃くした結晶を用いる事で、Ti:sapphire フェムト秒パルスレーザーから得られるレーザーのパルス幅が容易に 20 fs ( $2 \times 10^{-14}$  秒) を切る事ができるようになっている。去年の Ultrafast Phenomena の国際会議では、再生増幅したフェムト秒パルスレーザーを光学パラメトリック増幅 (Optical Parametric Amplification) する事で、550~700nm の波長域でも sub-5 fs のパルス幅を持ったレーザーパルスが発振可能である事が報告されている。[3] レーザーを用いて物性研究する者にとって、このようなパルスレーザーは非常に嬉しい報告である。現在世界的に X 線パルスレーザーの開発が進められており、楽しみな状況である。

半導体や半金属などの光によってキャリアの実励起を伴う試料に、十分パルス幅の狭いフェムト秒パルスレーザーを照射すると、位相の揃った格子振動が試料中に発生する。これを我々はコヒーレントフォノンと称しているのだが、このコヒーレントフォノンについて、理解されていない点が意外と多く残されている。それは、コヒーレントフォノンの研究の際の実験方法および対象試料に、問題があると考えられるが、現在の所、コヒーレントフォノンの統一的な物理的性質を理解するために、多くの研究者がこの内容に挑んでいる。コヒーレントフォノンの Review paper は多くあるので、それを参考にされると、現状の研究内容を理解し易いと思う。[4]-[13] コヒーレントフォノンの研究において、現在、何が問題になっているかを、すなわち、現状の問題意識が何処にあるのかを、数点のみをここで列記しておく。

- 1) コヒーレントフォノンの物理的性質について (初期位相問題も含む)
- 2) コヒーレントフォノンの時・空間干渉性について
- 3) エネルギー・運動量保存則について
- 4) 生成・検出メカニズムについて

コヒーレントフォノンの生成の際に、4 光波混合法を用いる場合は、意識的に生成手段を限定しているため、3) エネルギー・運動量保存則については明確である。しかし、試料にフェムト秒パルスレーザーを照射してコヒーレントフォノンを作成した後、プローブ光の反射率や透過率などの時間変化を見る方法 (反射/透過型ポンプ・プローブ法) では、このエネルギー・運動量保存則は意外に分かっていない。ここでは、4 光波混合法との対比を交えながら、上記の色々な問題点について議論して行きたい。

## 2 コヒーレントフォノンの測定方法

コヒーレントフォノンの生成方法には、1つのポンプ光のみを試料に照射する方法、または、2つ以上のポンプ光を照射する方法（ここでは、2つのポンプ光を照射する方法に限定する）がある（図1参照）。コヒーレントフォンは、ポンプ光に対して時間遅れを持ったプローブ光を照射し検出することで、時間領域の振動として得られる。4光波混合法によるコヒーレントフォンは、図1 (b) に相当し、2つのポンプ光によって物質内に過渡的な回折格子を生成し、プローブ光の回折光を観測する事で得られる。この時の過渡的な回折格子の格子間隔は、2つのポンプ光の物質内での交差条件（波長および交差角）で決まるため、生成されるコヒーレントフォンの波数は生成条件で決定される（詳細は生成メカニズムで議論）。ポンプ光が1つの場合の測定方法に、反射／透過型ポンプ・プローブ法、Optical Kerr Effect 法、縮退4光波混合法、第2高長波発生法、THz電磁波発生法などがある。縮退4光波混合法は、上記の4光波混合法において、2つのポンプパルスを1つにし（縮退させ）、プローブ光の回折光を測定する方法である。我々が用いている反射／透過型ポンプ・プローブ

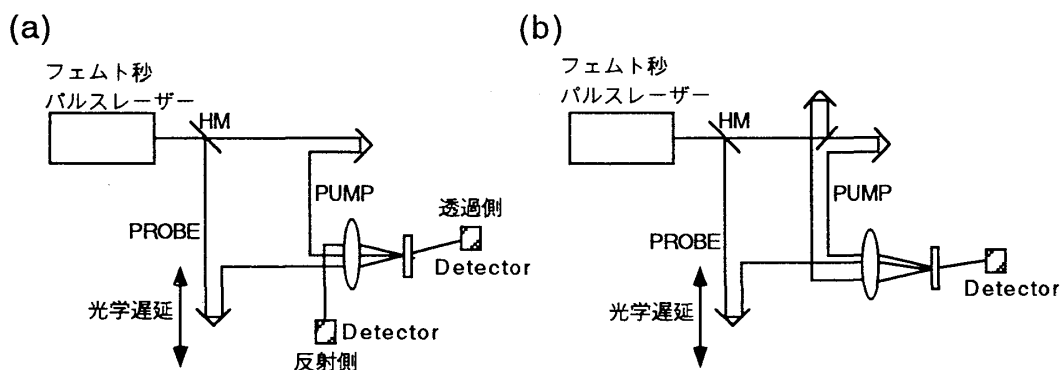


図1: 種々のコヒーレントフォノンの測定方法。(a) ポンプ光が1つの場合の測定方法と (b) ポンプ光が2つの場合の測定方法。

法は、図1 (a) に対応しており、一つのポンプ光を試料に照射した後、時間遅延させたプローブ光の反射率または透過率の変化を時間的に測定する方法である。このポンプ・プローブ法の一つに、光学カー効果を用いた測定方法（Optical Kerr Effect 法）がある。それは、ポンプ光を試料に照射する事で、原子分極や電子分極を介した電気光学効果によって物質が異方性を生じ、複屈折が生じる。そこに、プローブ光を直線偏光で入射するとその透過光は楕円偏光になる。これを利用してコヒーレントフォンを測定する方法がある。これについての詳細は、参考文献に委ねる。図1 (a)

に示す反射／透過型ポンプ・プローブ法を、我々が用いている理由として、対象となる試料が半導体や半金属であり、Ti:sapphire レーザーに対して不透明なためである。それに対して、4 光波混合法や Optical Kerr Effect 法は、透明物質に良く用いられている。なぜなら、4 光波混合法は試料中に過渡的回折格子を作成するためであり、Optical Kerr Effect 法は複屈折を利用しているためで、測定上透明試料の方が好都合なのである。

### 3 生成・検出メカニズムについて

ここでは、現在考えられている生成メカニズムを列挙するのみに止めておく。

#### 3.1 Impulsive Stimulated Raman/Brillouin Scattering (ISRS/ISBS)

時間幅の狭いパルスレーザーは、不確定性関係からエネルギー（振動数）領域では大きく広がって分布している事になる。この振動数の広がり  $\Delta\omega$  がフォノンの振動数  $\Omega$  より大きければ、誘導ラマン効果によって振動数の広がり  $\Delta\omega$  より小さい振動数を持ったフォノンが励起される。（図 2 (a)）この機構ではポンプ光によって原子の熱平衡位置の周りで振動が励起されることになる。言い換えると、直接原子を振動させていると考えられる。そのため、振動としては、sin 型の振動となる。すなわち、振りを考えた場合は、振りが振動していない状態で、錘を直接たたく事になる（図 2 (b)）。

2つのポンプ光によって生成されたコヒーレントフォノンの場合（4 光波混合法の場合）、2つのポンプ光の波数ベクトル ( $k_1, k_2$ ) と生成されたコヒーレントフォノンの波数ベクトル  $q$  の間には、位相整合条件が成り立ち、

$$q = k_1 - k_2 \quad (1)$$

一意的に  $q_p$  が決まる。時間遅延を与えて照射したプローブ光（その波数ベクトルを  $k_p$  とする）は、先に述べたコヒーレントフォノンによる過渡的回折格子によって回折され、その方向 ( $k_s$ ) は、

$$k_s = q + k_p = k_1 - k_2 + k_p \quad (2)$$

で決定される。

ポンプ光が1つの場合は、上記の  $k_1, k_2$  が同じものとみなす事ができる。 $k_1 = k_2$  より、生成されるフォノンの波数ベクトルは 0 となる。例えば、

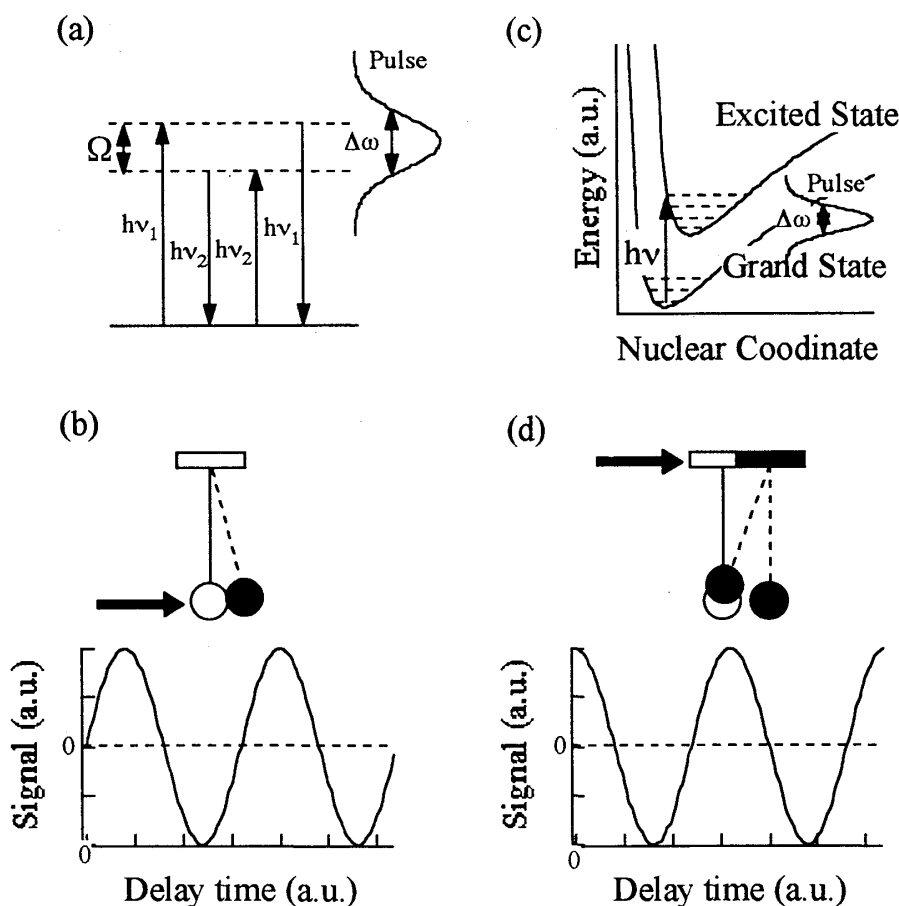


図 2: コヒーレントフォノンの種々の発生メカニズムの例。(a)ISRS/ISBS、および、(b) その場合の振動の様子。(c)DECP、および、(d) その場合の振動の様子。

OKE 法によって観測されるフォノン Brillouin ゾーンの中心 ( $q = 0$ ) であると考えられる。それは、自然な考え方であり、特に透明試料では、ポンプ光によって励起している領域は非常にマクロ的であるため、 $q = 0$  のフォノンが観測される。ただし、縮退 4 光波混合法を用いて、プローブ光の回折光を観測する場合は、 $k_1 = -k_2$  と考え、プローブ光の回折方向が決定される。その場合の、フォノンの波数ベクトルは、 $q = 2k$  となる。

### 3.2 Displacive Excitation of Coherent Phonon (DECP)

コヒーレントフォノンの発生メカニズムの中でも、古典的に考える事のできるメカニズムのひとつである。これは、分子性結晶や色素溶液におけるコヒーレントな分子振動の発生のメカニズムの説明に適している。このメカニズムを半金属などの無機物質におけるコヒーレントフォノンの発生

メカニズムに適用したのが、Zeigerらである。図2 (c) に示すように1原子系における基底電子状態と第1励起電子状態のエネルギーダイアグラムが成立しているとする。このような系にレーザーが照射され電子が励起される時、もしレーザーパルスのパルス幅が電子の振動周期よりも十分に短ければ、原子核の変位はフランク・コンドンの原理に従う。すなわち、図2 (c) のように原子核の変位がおこる事も無く、電子は垂直に励起される。この後原子核は、第1励起状態のポテンシャル曲線に沿って、新しい平衡位置に向かって運動し始める。エネルギー保存則に従うと、原子核は新しい平衡位置を通り過ぎ、一番右端の等エネルギー位置まで移動する。このようにして、原子核は新しい平衡位置を中心にして振動し始めるのである。このため、コヒーレントフォノンの振動は、cosine 型の振動として観測されると考えられる (図4 (d))。

### 3.3 Ultrafast Screening of Space-Charge Field

これは、表面空間電荷層の電界が励起された電子-正孔によって瞬間的にスクリーンされる事が引き金となってコヒーレントフォノンが発生すると考えられているモデルである。この場合の振動は cosine 型になると予想される。他には、熱効果による低振動数領域の音響フォノンを生成するメカニズムが挙げられる。しかし、これらのメカニズムは、ISRS/ISBSを除いて、基本的に発生メカニズムを議論したものである。検出メカニズムについては、殆ど議論されていない。我々がコヒーレントフォノンの観測に用いている測定方法は、前にも述べたように、反射/透過型ポンプ・プローブ法である。その際、反射率変化  $\Delta R(t)/R_0$  を見る事でコヒーレントフォノンの振動が観測される事を考えれば、次の表式が考えられる。

$$\frac{\Delta R(t)}{R_0} \sim \frac{1}{R_0} \left[ \left( \frac{\partial R}{\partial \epsilon} \right) \left( \frac{\partial \epsilon}{\partial E} \right) \left( \frac{\partial E}{\partial Q} \right) \Delta Q(t) + \left( \frac{\partial R}{\partial n} \right) \Delta n(t) \right] \quad (3)$$

ここで、 $Q$  はコヒーレントフォノンの一般座標、 $\epsilon$  は誘電率、 $E$  は原子変位によって誘起された電子または正孔のエネルギー、 $n$  は電子または正孔の密度である。 $(\partial E/\partial Q)$  は deformation potential (すなわち、電子-格子相互作用) であり、 $(\partial \epsilon/\partial E)$  は誘電率のエネルギー分散を表わす。上記の第1項は、コヒーレントフォノンによる反射率変化を表わし、第2項は、励起キャリアの数による反射率変化を示す。この表式は、励起キャリア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が重畳すると言う事を表わしている。

## 4 コヒーレントフォノンの時・空間干渉性について

コヒーレントという単語は、日本語では可干渉性と訳される。最も始めに、このコヒーレントフォノンと命名した研究者名は、筆者の知る限り定かでないが、たぶん、K. A. Nelson が始めに使用したのでは無いと思われる。彼は、1981年当時は、Laser Induced Phonons とか Coherent Generation of Phonon などの単語を用いていた。1985年には、Coherent Phonon という単語を論文中に用いている。実際にこのコヒーレントフォノンに可干渉性が存在するのだろうか？

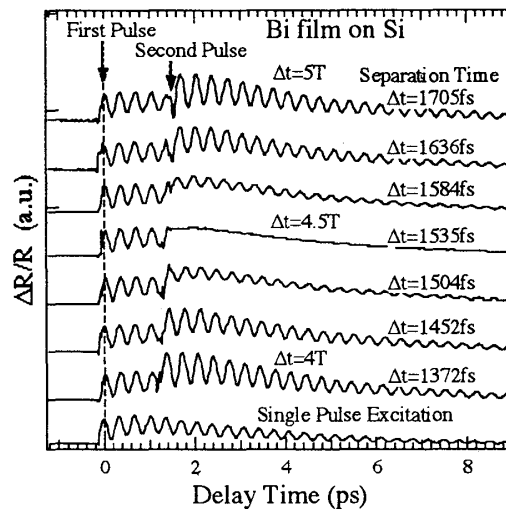


図 3: ダブルパルスによるコヒーレントフォノンの時間領域での干渉実験

我々は、手始めに時間領域での干渉性を調べた [14]。その方法として、Michelson 干渉計を組み、ポンプ光をダブルパルス（時間的に分離された2つのパルス）にした後、このダブルパルスを励起光として、半金属である Bi 中に2組のコヒーレントフォノン ( $A_g$  モード) を作成し、コヒーレントフォノンの時間領域での干渉効果を調べた。その結果、光の干渉と同様に、ダブルパルスの時間間隔を変えた時に合成されたフォノンの振幅が正弦波的に変化する事が分かった (図 3)。しかし、合成波の位相は、ダブルパルスの時間間隔に対して連続的には変化せず、ダブルパルスの時間間隔がコヒーレントフォノンの周期の半整数倍の時、異常をきたす事が分かった。この理由ははっきりしないが、コヒーレントフォノンが部分的に空間的な干渉を起こしているためではないかと類推している。このように、時間領域での干渉性は、GaAs における LO フォノンについても確認されており、波と波の合成で議論できる事を示している。

時間領域の可干渉性を利用して、次の実験も行っている [15]。試料とし

て、Bi-Sb の混晶を用いた。この Bi-Sb の混晶は、 $A_g$  モードに関して、3 モード型であり、Bi-Bi 結合に関するモード、Sb-Sb 結合に関するモード、および、Bi-Sb 結合に関するモードの 3 本が観測される。この Bi-Sb 混晶に、あるパルス間隔を持ったパルス列を照射する事で、3 本の中の 1 本のみを増幅したり、2 本を増幅したりする事が可能になるはずである。この確認実験を行った結果が図 4 である。このようにパルス列を用いたフォノンの制御が実験的に可能であり、この技術を応用すれば特定のフォノンのみを増幅し、結晶構造の制御も可能かもしれない。

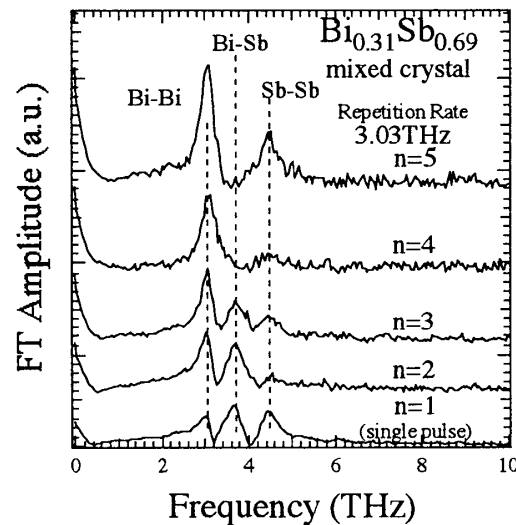


図 4: パルス列を用いたコヒーレントフォノンのモード選択増幅

コヒーレントフォノンの空間干渉性については、先の実験で位相と言う観点からの考え方もあるが、しかしながら、それでは未だはっきりしない。すなわち、コヒーレントフォノンを空間的に重ね合わせる事で、コヒーレントフォンは完全に無くなるのだろうか？この問題については、現在の所残された疑問であるが、もし当日までにその兆候を示す結果が得られたら、その話しよう。

## 5 コヒーレントフォノンの諸性質について

コヒーレントフォノンを観測した事によって得られる情報として、そのフォノンの振動数（周期） $\omega_0$ 、緩和時間  $\tau$ 、初期位相  $\phi$ 、振幅  $A$  などがある。このコヒーレントフォンは、ラマン分光法や赤外分光法で観測されるフォノンと同じなのか、または違うのか、疑問が生じる。もし違うなら、何が違うのかが問題になってくる。通常、フォノンの時間領域での振

動は、古典的に、次の運動方程式を解く事によって得られる。

$$\frac{d^2x}{dt^2} + 2\gamma\frac{dx}{dt} + \omega_0^2x = 0 \quad (4)$$

ここで、 $\omega_0$  は抵抗が無い時の固有角振動数であり、 $\gamma = 1/\tau$  は減衰定数、 $\tau$  は緩和時間である。この解は、 $\gamma < \omega_0$  の場合 (underdamp の場合)

$$x = Ae^{-\gamma t} \cos(\tilde{\omega}t + \phi) \quad (5)$$

が得られる。ここで、

$$\tilde{\omega} = \sqrt{\omega_0^2 - \gamma^2} \quad (6)$$

である。上式をデータにフィットする事で、コヒーレントフォノンの振動

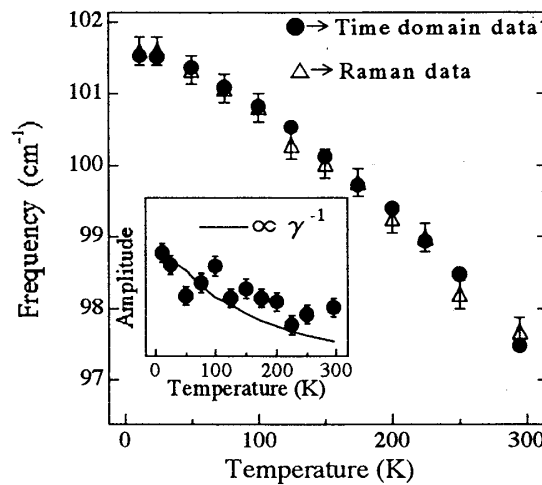


図 5: Raman 散乱測定および時間領域分光法で得られた Bi の  $A_g$  モードの振動数の温度依存性、およびコヒーレントフォノンの振幅の温度依存性

数 (周期)  $\omega_0$ 、緩和時間  $\tau$ 、初期位相  $\phi$ 、振幅  $A$  が精度良く求まる。一方、Raman 散乱分光法を用いる事で観測されたスペクトルと比較する事で、実際どのモードが観測されているかが分る。ここでは、Bi 試料を例にして、比較を行って行く。得られたモードの振動数との比較を行うと、完全に Raman 散乱測定から得られたフォノンの振動数とコヒーレントフォノンの振動数は一致する (図 5) [16]。同様にして、減衰時間についても比較を行った。これは、コヒーレントフォノンの緩和現象が、エネルギー緩和によるものなのか、位相緩和によるものなのかを明らかにするためにやっている。

## 5.1 コヒーレントフォノンの緩和時間について

cw の Ti:sapphire レーザーを励起光源として、Bi 試料のラマンスペクトルを測定し、時間領域測定の結果と比較した (図 6) [16]。両者の測定から求めたフォノンの減衰時間は低温で少し違いがあるが、実験誤差の範囲内で一致していた。Raman 散乱測定に観測されている Bi の  $A_g$  モードの減衰は、光学フォノンが消滅し音響フォノンを生成する非調和減衰過程によって生じていることが確かめられている。従って、両者の減衰時間の一致は、コヒーレントフォノンの減衰に関してエネルギー緩和が支配的で、純位相緩和の寄与は小さい事を示している。しかしながら、他の試料については測定しておらず、全てのコヒーレントフォノンについて、エネルギー緩和が支配的であるとは言えない。今後種々の試料で、調べる必要がある。

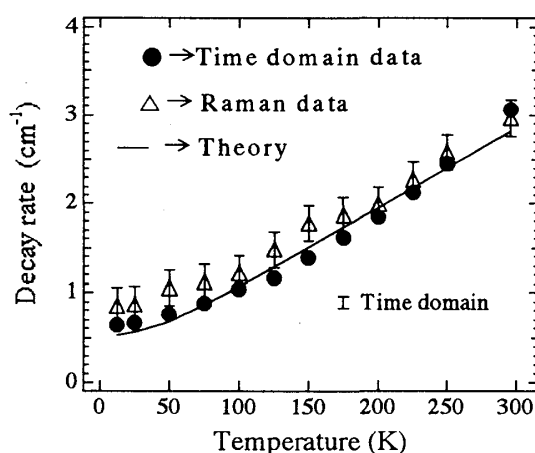


図 6: Raman 散乱測定および時間領域分光法で得られた Bi の  $A_g$  モードの緩和時間の温度依存性

## 5.2 コヒーレントフォノンの振幅について

コヒーレントフォノンの振幅は、古典的には原子変位量によって表わされると、Kuznetsov と Stanton によって示されている [17]。そのコヒーレントフォノンの変位量は、GaAs の LO フォノンの強励起条件で作成した場合、 $3 \times 10^{-4}$  nm と非常に大きな量になる (格子乗定数の約  $10^{-3}$  程度)。また、フォノンの数に直すと、なんと  $10^{19}$  cm $^{-3}$  となる。このようなフォノンは非平衡状態のフォノンと思われる。そこで、非平衡状態のフォノンであるかどうかを知るために、このコヒーレントフォノンの振幅は温度と

共にどのように変化するのかについて、興味を持たれる。

図5の挿入図にコヒーレントフォノンの振幅の温度依存性を示している[16]。この結果から、コヒーレントフォノンの振幅は低温になる程大きくなっている事がわかる。通常、熱平衡状態にあるインコヒーレントなフォノン(特にラマン散乱測定で得られるフォノンの振幅)の数は、Bose-Einstein分布に従い、温度が高くなる程フォノンの数が増えることになる。そのため、インコヒーレントなフォノンの振幅は温度と共に大きくなる事になる。しかしながら、コヒーレントフォノンの振幅は、温度に対する振る舞いは逆であり、温度と共に小さくなっている。これは、コヒーレントフォノンが非平衡状態にある事に由来しているものと考えている。言い換えれば、非平衡状態のコヒーレントフォノンの数、およびそのコヒーレントフォノンの数と熱平衡状態にあるインコヒーレントなフォノンの数との比が、振幅の温度依存性を決めていると考えている。コヒーレントフォノンは、熱平衡状態にあるフォノンをフェムト秒パルスによって強制的に励起する事で生じている。低温になる程、熱平衡状態にあるフォノンの数が少なくなるため、相対的にコヒーレントフォノンの生成が容易になる。逆に温度が高くなる程インコヒーレントフォノンの数が増え、その中でのコヒーレントフォノンの生成が難しくなるためではないかと現在考えている。簡単に言うと、乱雑状態が激しい中で、整列した状態を作成するのはむづかしいという事である。

### 5.3 コヒーレントフォノンの位相について

コヒーレントフォノンの初期位相の測定は、パルス幅が狭くなる程正確に決定できることを我々は報告しているが[16]、このコヒーレントフォノンの初期位相程良く分かっていないものはない。初期位相  $\phi$  (今後、初期位相を位相と呼ぶ事にする) は、生成メカニズムの所で述べたように、生成過程で変化する。この位相と言うものは、先ほどの振動数や減衰時間のように、物理的意味のある値を持つのだろうか? Ziger らの review[9] には、同じ半金属同士でも位相は違っているとある。我々の測定結果からも、半導体と半金属の間でも光学フォノンの位相が違っていると得られた。このように、位相は物質固有の値のように見えるのだが、本当にそうなのだろうか?

また、検出方法として、検出器の前に分光器を置き、反射してきたプローブ光を分光し、波長毎にコヒーレントフォノンの位相が変化すること分かっている。すなわち、観測しているコヒーレントフォノンの位相は、エネルギー領域で分散を持っている事を示している。現在の所、私個人としては、この位相についての考察ができていない。もうしばらくコ

ヒーレントフォノンの本質について研究する必要があると考えている。

## 6 半導体超格子中のコヒーレントフォノン

半導体超格子 (GaAs/AlAs) 中のコヒーレントフォノン (音響および光学フォノン) についての研究は、主に3つのグループ (イギリス、ドイツ、日本) でお互いに競い合っていると思われる。半導体超格子における音響フォノンの折り返しを反射型ポンプ・プローブ法で始めて観測したのは、Yamamoto らによる [18]。このコヒーレント折り返し音響フォノンの研究の切っ掛けを与えた事は、非常に意義のある事である。なぜなら、この音響フォノンの観測を考える上では、生成・検出メカニズムの議論が必要となり、この世界に一石を投じた研究内容と言える。その後、反射型ポンプ・プローブ法でコヒーレント折り返し音響フォノンを観測すると3本のモードが得られる事が報告されている [19]–[21]。その3本のモードの振動数を音響フォノンの分散曲線に合わせると、そのモードは、 $q=0$  と  $q \neq 0$  のモードに対応している。

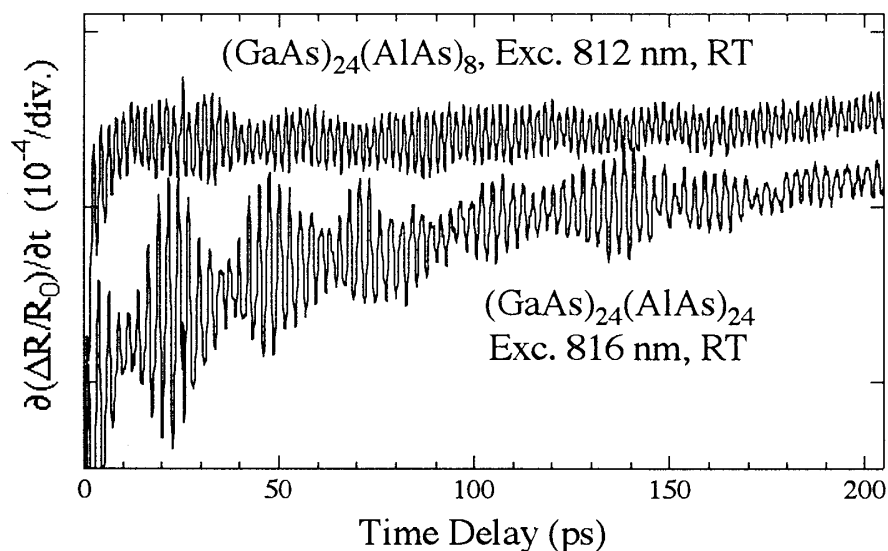


図 7: GaAs/AlAs 超格子に観測される折り返し音響フォノンの時間領域スペクトル

反射型ポンプ・プローブ法で得られた時間領域スペクトルを図7に示す。時間領域スペクトルでも分るように、振動にうなりが見える。すなわち、この振動は少なくとも2本以上のモードから成り立っている事を示している。その時間領域スペクトルをフーリエ変換し、周波数領域のスペクトルにしたものが図8である。この周期の超格子では、3本のモードの組

みが、約 0.4 と 0.8 THz の辺りに 2 つ見えている。

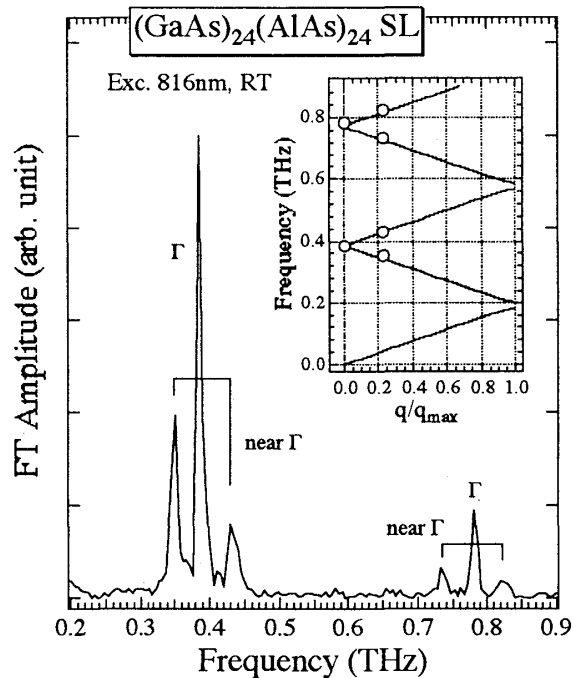


図 8: GaAs/AlAs 超格子に観測される折り返し音響フォノンの時間領域信号のフーリエ変換スペクトル、および折り返し音響フォノンと観測された折り返し音響フォノンのピーク振動数との関係 (挿入図)

得られた 3 本のピーク振動数を、折り返し音響フォノンの分散曲線にあわせた結果が図 8 の挿入図である。波数ベクトル  $q$  が 0 と有限なコヒーレントフォノン ( $q = 0, 2k$ ,  $k$  は試料中のレーザー光の波数) の 2 組が存在している事は明らかである。コヒーレントフォノンの波数ベクトルについて知見を得る事は、コヒーレントフォノンの生成・検出メカニズムを得る手掛かりになると考えられる。何故、 $q = 0, q \neq 0$  が観測されるのか非常に疑問になる。特に、 $q \neq 0$  のコヒーレントフォノンが何故観測されるのかが議論の対象になると思われる。この波数ベクトルの起源について、Merlin や Bartels が 1 つのアイディアを出している [11, 20]。それは、 $q \neq 0$  のコヒーレント音響フォノンの生成過程に、先に述べた ISRS 過程を考慮すれば説明が可能であると言うのである。ポンプ光を試料に照射した時、試料表面または基板との界面で反射が生じる。この反射を考慮する事で、 $q = 2k$  のフォノンが生成されると説明している。

本当に、 $q = 2k$  の折り返し音響フォノンは ISRS を考えた生成過程のみによって生じたものなのだろうか？我々は、その疑問を解決するため、2 色のポンプ・プローブ法を用いて、コヒーレント折り返し音響フォノンの測定を行った [22]。もし、 $q = 2k$  の折り返し音響フォノンが ISRS 過程を

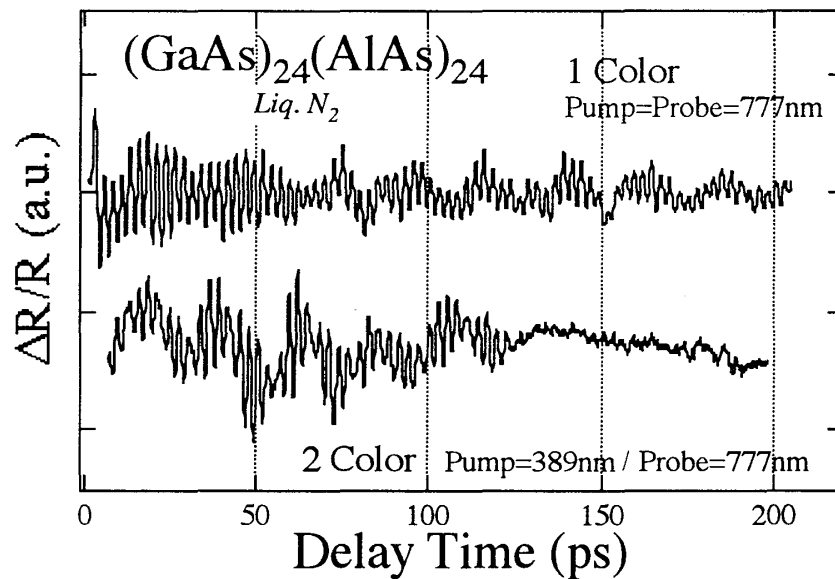


図 9: 2 色ポンプ・プローブ法で測定した GaAs/AlAs 超格子に観測される折り返し音響フォノンの時間領域スペクトル

通して生成されているならば、ポンプ光の波長を変える事で、得られるコヒーレント折り返し音響フォノンの振動数はシフトするはずである。ここでは、ポンプ光の波長に、Ti:sapphire パルスレーザーの第 2 高調波（2 倍波）を用いた。試料は、 $(\text{GaAs})_{24}(\text{AlAs})_{24}$  超格子であり、その超格子の膜厚は約 680 nm である。ここで、添字は層数であり、単層の厚さは約 0.283 nm である。その結果が、図 9 である。時間領域スペクトルにおいて、非常に興味深い事に、2 色ポンプ・プローブ法における振動は、通常の 1 色ポンプ・プローブ法から得られた振動と比べて、早い時間で消えている事がわかる。これについては、後で議論する。

この時間領域スペクトルをフーリエ変換したのが図 10 である。フーリエ変換スペクトルから、2 色ポンプ・プローブ法で得られたスペクトルには、 $q = 0$  の折り返し音響フォノンが消えている事が分る。また、 $q \neq 0$  の折り返し音響フォノンの振動数は、2 色ポンプ・プローブ法も 1 色ポンプ・プローブ法も同じ振動数である。先に述べたように、 $q = 2k$  の折り返し音響フォノンが ISRS 過程を通して生成されているならば、 $q \neq 0$  の折り返し音響フォノンの振動数は、挿入図の分散曲線にあるように、大きくシフトしなければならない。この結果から、 $q \neq 0$  の折り返し音響フォノンは、生成過程に寄与していると言うより、検出過程に依存している事になる。すなわち、 $q = 2k_{\text{probe}}$  という結果が見い出される。

図 10 の結果から、2 色ポンプ・プローブ法においては、図 9 に得られている振動は、 $q = 0$  の振動は存在せず、 $q \neq 0$  のフォノンのみが存在してい

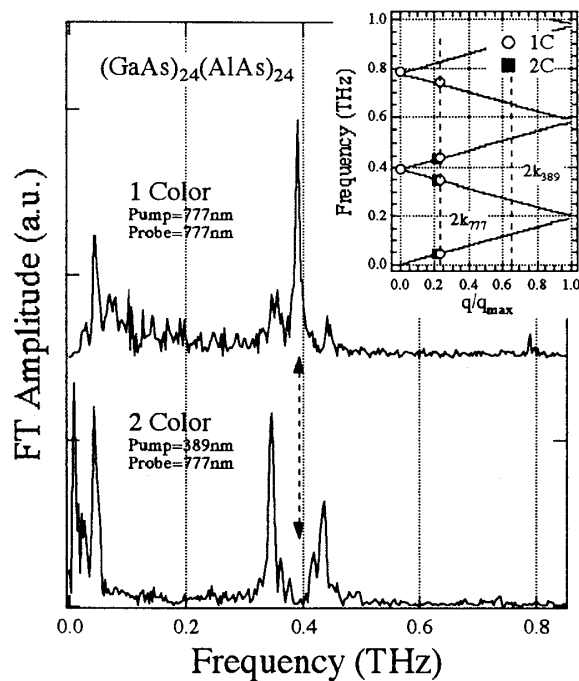


図 10: 2 色ポンプ・プローブ法で得られた折り返し音響フォノンのフーリエ変換スペクトル、および折り返し音響フォノンと観測された折り返し音響フォノンのピーク振動数との関係 (挿入図)

るために、生じたものである。また、測定条件を考えた場合、GaAs/AlAs 超格子に対して、2 倍波の波長 (389 nm) の侵入長は数 10 nm であり、GaAs/AlAs 超格子の膜厚 (680 nm) に対して、十分浅く、すなわち、超格子の表面層のみを励起している事になる。超格子層全体を励起していないため、マクロ的な性質の  $q = 0$  の折り返し音響フォノンは生成されていないため、フーリエ変換スペクトルに、 $q = 0$  の折り返し音響フォノンが観測されないのは至極当然な結果である。また、 $q \neq 0$  の折り返し音響フォノンによる振動は、図 10 から、途中で消えている。これは、音響フォノンの群速度 (音速、約  $5 \times 10^5$  cm/s) および超格子層の膜厚から考えると、振動が消える時間は約 130 ps になり、結果と一致する。すなわち、表面で生成された音響フォノンが伝搬して行き、基板の GaAs に到達した後、その基板の中 (基板の反対側) に抜けて行っている事を意味している。

上記の結果から、我々は、半導体超格子中に生成されているフォノンについて、以下のように考えている。2 色ポンプ・プローブ測定において、2 倍波のポンプ光を GaAs/AlAs に照射する事で、試料表面層に瞬時に電子や正孔が励起される。光励起キャリアの存在によって、表面層附近でポテンシャル歪が生じ、それがフォノンを生成しているものと考えている

(ultrafast screening of surface-charge potential のメカニズムに類似)。生成されたフォノン は表面層のみに存在し、波束的な性質を持つ (フォノン波束)。そのフォノン波束が超格子中を伝搬し、超格子特有な折り返し音響フォノンを誘起する。プローブ光の波数ベクトルに対して位相整合条件を満たす折り返し音響フォノンのみが、プローブ光によって検出されると考えている。この考察については、もう少し詳しく実験をする必要があると考えている。

## 7 最後に

今まで、議論してきた内容は、コヒーレントフォノンの研究における一面にしかすぎない。フォノンの時間領域の記述は、前にも記したように

$$x = Ae^{-\gamma t} \cos(\tilde{\omega}t + \phi) \quad (7)$$

であるが、この式におけるそれぞれの物理定数がエネルギー  $E$  や波数ベクトル  $k$  に依存すると言う議論は殆どしなかった。すなわち、上式を

$$x = A_{E,k} e^{-\gamma_{E,k} t} \cos(\tilde{\omega}_{E,k} t + \phi_{E,k}) \quad (8)$$

と表わし、議論すべきであった。また、今後の研究に委ねるのだが、上記の式において、それぞれのパラメーター (例えば、振動数や位相) は時間と共に変化するということは、あるのだろうか? 何故このような事にこだわるかと言うと、先でも述べたようにコヒーレントフォノンは非平衡状態のフォノンである。誘電体などの相転移物質において、相転移温度附近における非平衡フォノンに興味を持っているからである。

コヒーレントフォノンに従事している研究者は主に実験的研究者であり、色々なメカニズムを提唱している。理論的バックグラウンド無しに議論しているためと思われるが、そのメカニズムが本質的なものなのか、定かで無いと感じ取れる。理論的研究を行っている研究者が少ないために、このような状況に陥っていると考えられる。是非、理論的研究者にこのコヒーレントフォノンについて研究を行っていただきたい。今後、コヒーレントフォノンの統一的メカニズム、すなわち、コヒーレントフォノンの本質が明らかになるであろうと考えている。そうなれば、このコヒーレントフォノンをプローブとした、種々の物性研究が生まれてくると期待している。研究室にフェムト秒パルスレーザーまたはピコ秒パルスレーザーがあれば、是非ともコヒーレントフォノンを測定してもらいたい。

今回の議論において、我々の研究室で得られたデータを数多く提示した。この研究結果は一緒に苦労してきた共同研究者との成果である。ここ

で、長谷宗明氏、松谷圭氏、板野哲也氏、宮丸文章氏、中島誠氏、木曾田賢治氏、播磨弘氏、中島信一氏、谷正彦氏、阪井清美氏、中山正昭氏、A. Bartels、T. Dekorsy、H. Kurz に感謝したい。

## 参考文献

- [1] J. -C. Diels, and W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*, (Academic Press, San Diego, 1996).
- [2] J. Shah, *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures*, (Springer, Berlin, 1996).
- [3] A. Shirakawa, et al., *Ultrafast Phenomena XI*, edited by T. Elsaesser, J. G. Fujimoto, D. A. Wiersma and W. Zinth (Springer, Berlin, 1998), p54.
- [4] Y. -X. Yan and K. A. Nelson, J. Chem. Phys., **87**, 6240 (1987), and *ibid.*, **87**, 6257 (1987).
- [5] S. Ruhman, A. G. Joly, and K. A. Nelson, IEEE J. Quantum Electron, **24**, 460 (1988).
- [6] L. -T. Cheng, and K. A. Nelson, Phys. Rev. **B37**, 3603 (1988).
- [7] W. A. Kütt, W. Albrecht, and H. Kurz, IEEE J. Quantum Electron, **28**, 2434 (1992).
- [8] T. Pfeifer, T. Dekorsy, W. Kütt, and H. Kurz, Appl. Phys. **A55**, 482 (1992).
- [9] H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. **B45**, 768 (1992).
- [10] A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, Phys. Rev. **B51**, 7555 (1995).
- [11] R. Merlin, Solid State Commun., **102**, 207 (1997).
- [12] T. Dekorsy, G. C. Cho, and H. Kurz, J. Nonlinear Opt. Phys. Mater., **7**, 201 (1998) and *Light Scattering in Solids VII*, edited by Cardona and Güntherodt, in press.
- [13] 中島信一ら、表面科学、第19巻、64頁、1998年、または、日本物理学会誌、第53巻、607頁、1998年

- [14] M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, S. Nakashima, M. Tani, K. Sakai, and M. Hangyo, Appl. Phys. Lett., **69**, 2474 (1996).
- [15] M. Hase, T. Itano, K. Mizoguchi, and S. Nakashima, Jpn. J. Appl. Phys., **37**, L281 (1998).
- [16] M. Hase, K. Mizoguchi, H. Harima, S. Nakashima, and K. Sakai, Phys. Rev. **B58**, 5448 (1998).
- [17] A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, Phys. Rev. Lett., **73**, 3243 (1994).
- [18] A. Yamamoto, T. Mishina, Y. Masumoto, and M. Nakayama, Phys. Rev. Lett., **73**, 740 (1994).
- [19] T. Mishina, Y. Iwazaki, Y. Masumoto, and M. Nakayama, Solid State Commun., **107**, 281 (1998).
- [20] A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, and K. Köhler, Appl. Phys. Lett., **72**, 2844 (1998), and Phys. Rev. Lett., **82**, 1044 (1999).
- [21] K. Mizoguchi, K. Matsutani, M. Hase, S. Nakashima, and M. Nakayama, Physca B **249-251**, 887 (1998).
- [22] K. Mizoguchi, M. Hase, S. Nakashima, and M. Nakayama, Physca B **263-264**, 48 (1999).