

フォノン物性入門

北海道大学大学院工学研究科 水野誠司

1 はじめに：トンネル効果と古典的波動

一見、唐突に思えるかもしれないが、序論としてトンネル効果 [1] の話から始めたい。電子系に生じるトンネル効果は、典型的な「量子力学的」現象として知られている。これは、電子のエネルギーより高いポテンシャルバリアの領域においても波動関数が有限の値を持ち、さらにそのバリアの向こう側まで波動関数が「しみ出す」ことによって、いわゆる電子の「トンネル」が起こるという現象である。その最も本質的なところは電子の持つ波動としての性質に起因しており、電子が粒子的な性質と波動的な性質を同時に兼ね備えているという基本的な事実をいったん認めてしまえば、トンネル効果とは単に一般的な波動現象のひとつに過ぎないとも言える。要するに、ここで強調したいことは「トンネル効果は純粹に古典的な粒子には起こり得ないが、古典的な波動には起こりうる現象である」ということである。

この講義では固体中の格子振動の話を取りあげるわけであるが、この格子振動の波を古典的に扱うことが許される場合においても、ポテンシャル障壁の役割を演じる構造を用意してやればトンネル効果を見ることができるということになる。そのひとつの例が、周期多層構造である。さらに、周期多層構造を2つ直列に並べることによって、共鳴トンネル効果の生じる2重障壁系の作成も可能であり、これらを用いることによって、フォノンフィルター、フォノン共振器といった、いわゆる「フォノン光学デバイス [2]」なるものさえ考えることができる。

ということで、ここでは、色々な周期多層構造（超格子）中のフォノンの振る舞いについての話を主題にして、「フォノン物性」において最も基礎的であろうと思われる事柄のいくつかを解説したい。以下では、古典力学の範囲内の話ですむ場合においても、便宜上、「電子」に対応する言葉として「フォノン」という用語を用いることとする（例えば、「フォノンが入射する」等という使い方をする）。フォノンは電子に比べて速度が非常に遅く（～数 km/s）、また低温における平均自由行程が非常に長い（～1 mm）ことが知られているので、波の干渉効果に起因した種々の現象がより顕著に見えることが期待できる。なかでも、モード変化を伴う Bragg 反射に関連した現象などは興味深い。

2 格子力学モデルによる1次元の鎖の振動

周期多層構造中のフォノンの振る舞いを調べるためには、あらかじめ1次元鎖の振動の問題を理解しておくことが重要である。そこで、まず初めに格子力学モデルによる1次元鎖の振動の問題から話をはじめ。学部で用いる教科書においては、おおよそ次のような順序で進むのが標準的であろう [3, 4]：①まず初めに1次元単原子格子を考え、周期的境界条件を課すことによって分散関係を導出する。②次に基本構造をもつ1次元格子を取扱い、光学モードが出現することを理解する。③そして、3次元単原子格子と進み、縦波と2つの横波に対応する3つの分枝の出現することを知り、④単位胞に s 個の原子がある3次元格子の場合には、3個の音響分枝と $3s - 3$ 個の光学分枝が生じることなどを理解する。

一方、①、②における取扱いと同程度の簡単な数学で、いろいろな場合に重要となってくる局在振動モードを理解することができるが、それらをコンパクトに解説したテキストはあまり見あたらない。そこで、この章では①、②の結果を簡単にまとめた後に、1次元鎖モデルを用いた、不純物局在振動・表面局在振動についての話へと進むことにする。

2.1 完全に周期的な1原子格子：フォノン分散関係

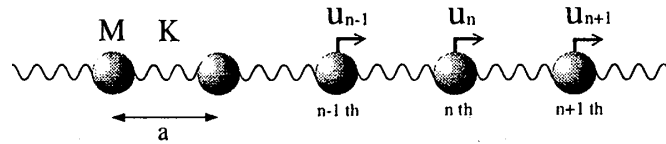


図 1: 1次元単原子鎖

図1のようにバネでつながった原子を考えて、Newtonの運動方程式をたてる：

$$M\ddot{u}_n = K(u_{n+1} + u_{n-1} - 2u_n). \quad (1)$$

ここで、 u_n は n 番目の原子の平衡点からの変位で、 M は原子の質量、 K はバネ定数である。原子のつながりが1次元であっても、その変位は一般には3次元であるが、ここでは簡単のため変位も同一直線上にあると仮定している（縦波）。原子の個数は N 個であるとし周期的境界条件 ($u_{n+N} = u_n$) を用いる。 N 個の独立な基準振動を求めるには、振動数を ω 、波数を k として

$$u_n = u e^{-i\omega t} e^{ikna} \quad (2)$$

とおく (a は格子定数で今の場合原子間距離に等しい)。(2) 式を (1) 式に代入することによって、分散関係

$$M\omega^2 = 4K \sin^2 \left(\frac{ka}{2} \right) \quad (3)$$

が得られる。ただし、 k は周期的境界条件によって定まり、

$$k = \frac{2\pi}{a} \frac{n}{N}, \quad n = 0, \pm 1, \dots, \pm \left(\frac{N}{2} - 1 \right), \frac{N}{2} \quad (4)$$

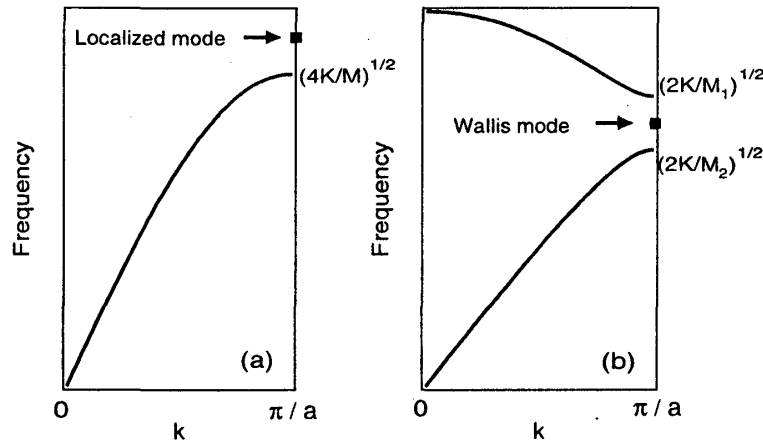


図 2: 分散関係

となる。基準振動は、これら N 個の k を与えることによって指定される。図 2(a) に分散関係 (3) を示す。波長 λ が格子定数に比べて十分大きいとき ($k = 2\pi/\lambda \ll \pi/a$)、 ω は k に比例しており、長波長の極限で 0 となる。逆に、波長が格子間隔程度になると、この線形性が成り立たなくなり（つまり分散が生じ）、最も短い波長 ($k = \pi/a$) のときに ω は最大値 $\sqrt{4K/M}$ をとる。

2.2 完全に周期的な 2 原子格子：音響モード、光学モード

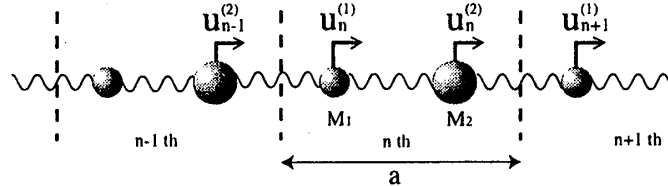


図 3: 2 原子鎖

図 3 のような、異なる質量 (M_1 と M_2) をもつ 2 種類の原子が交互に等間隔で並んだ場合（つまり、単位胞に 2 個の原子が含まれている場合）を考える。 n 番目の単位胞の質量 M_1 , M_2 の原子の変位をそれぞれ $u_n^{(1)}$, $u_n^{(2)}$ とし、原子は全て同一のバネでつながれているとすると、運動方程式は

$$M_1 \ddot{u}_n^{(1)} = K(u_n^{(2)} + u_{n-1}^{(2)} - 2u_n^{(1)}) \quad (5)$$

$$M_2 \ddot{u}_n^{(2)} = K(u_{n+1}^{(1)} + u_n^{(1)} - 2u_n^{(2)}) \quad (6)$$

と表される。周期的境界条件を用いることとし、(2) 式を一般化して

$$u_n^{(1)} = u^{(1)} e^{-i\omega t} e^{ikna} \quad (7)$$

$$u_n^{(2)} = u^{(2)} e^{-i\omega t} e^{ikna} \quad (8)$$

とおく。波数 k は (4) 式で与えられるものと同じであるが、 a は、あくまでも格子定数（＝単位胞の大きさ）であって隣り合う原子間の距離ではない。また、 N は単位胞の数であり、各単位胞には 2 個の原子があるので、自由度は $2N$ ということになる。分散関係は、(7)、(8) 式を (5)、(6) 式に代入することによって

$$\omega_{\pm}^2 = \frac{K}{M_1 M_2} \left\{ M_1 + M_2 \pm \sqrt{(M_1 + M_2)^2 - 4M_1 M_2 \sin^2(ka/2)} \right\} \quad (9)$$

と得られる。 N 個の k 各々に対して、振動数が ω_+ と ω_- で与えられる 2 つの基準振動が求まったわけだが、これらはそれぞれ光学モード、音響モードと呼ばれ、単位胞内における 2 個の原子の自由度に対応している。例えば、 $k=0$ のときを調べてみると、 $\omega = \omega_-$ のとき $u^{(1)}/u^{(2)} = 1$ となって、2 つの原子は同じ方向に一樣な運動をしており、疎密波になることを意味している。また、 $\omega = \omega_+$ のときは $u^{(1)}/u^{(2)} = -M_2/M_1$ となって重心のまわりで相対運動をしている。

図 2(b) に分散関係を示すが、

$$\frac{2K}{M_2} < \omega^2 < \frac{2K}{M_1} \quad (10)$$

の周波数のフォノンは、固有モードとして超格子中に存在できない（ここでは便宜上 $M_1 < M_2$ と仮定している）。

2.3 不純物原子を 1 個含んだ 1 原子格子：不純物局在モード

現実の結晶は、完全ではないし無限の大きさを持つものでもない。そこで、格子欠陥や表面が格子振動に及ぼす影響について調べる必要が生じる。このような問題を扱う際に有用で一般的な方法は Green 関数法である。しかしながら、一次元鎖の場合は視察によって運動方程式を解くことができ、不純物や表面に局在するような振動モードの特徴を定性的に理解することが容易である。この節では、2.1 で扱った 1 次元鎖に 1 個の不純物原子が含まれて

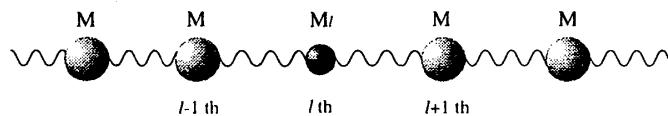


図 4: 1 個の不純物を含む単原子鎖

いる場合を考える [図 4]。 l 番目の原子が不純物で、その質量を M_l とすると、運動方程式は

$$M \ddot{u}_n = K(u_{n+1} + u_{n-1} - 2u_n) \quad (n \neq l) \quad (11)$$

$$M_l \ddot{u}_l = K(u_{l+1} + u_{l-1} - 2u_l) \quad (12)$$

と表される。ここで、 κ を実部が正の複素数とし、

$$u_n = u e^{-i\omega t} e^{-\kappa|n-l|a} \quad (13)$$

とおく。すなわち、不純物原子から離れるにしたがって変位振幅の大きさが指数関数的に減衰する解を探すわけである。(13) 式を (11) 式と (12) 式に代入することによって、次式を得る。

$$\omega^2 = \frac{2K}{M_l}(1 - e^{-\kappa a}) \quad (14)$$

$$\omega^2 = \frac{2K}{M}(1 - \cosh \kappa a) \quad (15)$$

この連立方程式を解くと

$$e^{\kappa a} = 1 - \frac{2M}{M_l} \quad (16)$$

が得られ(ここで、減衰しない解は排除してある)、

$$M_l < M \quad (17)$$

の場合に限って、減衰解であるための条件 $|e^{\kappa a}| > 1$ が満足されることがわかる。2.1 で扱ったような完全結晶の場合、このような解は許されない。変位振幅が鎖に沿って指数関数的に変化する場合、周期的境界条件を満足できないのはもちろんのこと、左右どちらかの方向で発散してしまい物理的な解とならないからである。しかしながら不純物原子が存在すると、その近傍では条件は別であり、不純物の位置から左右両方向に向かって減衰する解が許される。変位振幅は不純物から十分離れたところでは無視できるくらい小さくなっているので、周期的境界条件を満たすような局在解の構築が可能となっている。この局在モードの固有振動数は、(14) または (15) 式に (16) 式を代入することにより

$$\omega^2 = \frac{4K}{M}\alpha^2, \quad \alpha^2 = \frac{M^2}{M^2 - (M - M_l)^2} > 1 \quad (18)$$

と求まり、図 2(a) に示すように前節で求めた分散曲線の外側(高振動数側)に現れることがわかる。 M_l を徐々に M に近づけていくと、この固有振動数はバンドの上端に限りなく近づいていき、 $M_l = M$ でバンドにくっつくがこのときの解はもはや減衰解ではない。また、(13) 式を (2) 式の形に書くと

$$k = \frac{\pi}{a} + \frac{i}{a} \ln \left(\frac{2M}{M_l} - 1 \right) \quad (19)$$

と表されるので、局在振動の波数ベクトルは虚数成分を持つといってもよい((18) 式で与えられる固有振動数は、本来、複素数に拡張された波数空間においてプロットすべきであるが、図 2 では簡単のため実軸に射影した図を用いて)。波数ベクトルの実部は π/a で与えられるので隣り合う原子は互いに反対方向に動いており、その変位振幅の大きさは不純物原子から離れるにつれて指数関数的に減衰している、といった解になっている。

2.4 端のある 1 原子格子：表面局在モード

前節では、不純物原子が周期性を壊すと、変位振幅の大きさが減衰していく解が現れることを見た。ここでは、周期性を壊すもう一つの例として、表面が存在する場合を考えること

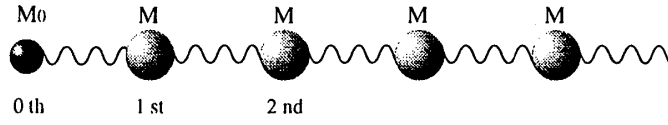


図 5: 端のある単原子鎖

にし、図5に示すような半無限の1次元単原子鎖をとりあげる。端に位置する原子を $n = 0$ 番目とし、その0番目の原子の質量を M_0 としておく（表面にある原子の質量がeffectiveに変化したと仮定しているわけであるが、このモデルはまた表面に吸着した原子の振動の問題を考える際にも用いられる）。この場合の運動方程式は

$$M\ddot{u}_n = K(u_{n+1} + u_{n-1} - 2u_n) \quad (n \neq 0) \quad (20)$$

$$M_0\ddot{u}_0 = K(u_1 - u_0) \quad (21)$$

と表される。前節と同様に減衰解を仮定し

$$u_n = ue^{-i\omega t}e^{-\kappa na} \quad (22)$$

とにおいて運動方程式に代入すると

$$e^{\kappa a} = 1 - \frac{M}{M_0} \quad (23)$$

を得る。さらに前節と同じ手順を繰り返すことにより、局在解の存在するための条件：

$$M_0 < \frac{M}{2} \quad (24)$$

が導かれる。固有振動数は

$$\omega^2 = \frac{4K}{M}\beta^2, \quad \beta^2 = \frac{M^2}{M^2 - (M - 2M_0)^2} > 1 \quad (25)$$

で与えられ、やはり分散曲線の外側に現れることがわかる。また、波数は

$$k = \frac{\pi}{a} + \frac{i}{a} \ln \left(\frac{M}{M_0} - 1 \right) \quad (26)$$

と書くことができる。(23)-(26)式は、前節で求めた結果(16)-(19)において $M_l = 2M_0$ の置き換えを行ったものに等しい。これは、不純物原子を結びつけるバネが2個から1個になったということからでてきた結果である。

(17)式からわかるように、不純物原子が結晶内部にある場合には、その質量が他の原子よりほんの僅かでも軽ければ局在モードは必ず出現する。一方、不純物原子が表面に位置している場合には局在モード出現のための条件(24)は、かなり厳しいものとなっており、ただ単に単原子鎖を切っただけ ($M_0 = M$ の場合) では局在解は現れない。この意味において、今の場合、表面局在モードというよりも不純物局在モードあるいは吸着原子局在モードとでもよんだほうが適切かもしれない。しかしながら、単位胞に2個の原子が含まれている場合は事情が異なる。

2.5 端のある2原子格子：Wallis モード

図6のような、半無限1次元2原子格子を考える。端にある原子の質量を M_1 とし、もう一つの原子の質量を M_2 とする。2.2における取扱いと同様に、 n 番目の単位胞における質

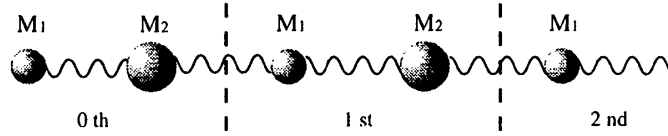


図 6: 端のある2原子鎖

量 M_1, M_2 の原子の変位をそれぞれ $u_n^{(1)}, u_n^{(2)}$ として運動方程式をたてると

$$M_1 \ddot{u}_0^{(1)} = K(u_0^{(2)} - u_0^{(1)}) \quad (27)$$

$$M_1 \ddot{u}_n^{(1)} = K(u_n^{(2)} + u_{n-1}^{(2)} - 2u_n^{(1)}) \quad (n \neq 0) \quad (28)$$

$$M_2 \ddot{u}_n^{(2)} = K(u_{n+1}^{(1)} + u_n^{(1)} - 2u_n^{(2)}) \quad (29)$$

となる。ここで

$$u_n^{(1)} = u^{(1)} e^{-i\omega t} e^{-\kappa n a} \quad (30)$$

$$u_n^{(2)} = u^{(2)} e^{-i\omega t} e^{-\kappa n a} \quad (31)$$

とおき、(27)-(29) 式に代入することによって

$$e^{\kappa a} = -\frac{M_2}{M_1} \quad (32)$$

が得られ、局在解の存在するための条件として

$$M_1 < M_2 \quad (33)$$

が導かれる。また、固有振動数と波数は、それぞれ

$$\omega^2 = K \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right) \quad (34)$$

$$k = \frac{\pi}{a} + \frac{i}{a} \ln \left(\frac{M_2}{M_1} \right) \quad (35)$$

と求まる。1次元2原子格子の場合、2.2で見たように音響モードと光学モードの間の周波数ギャップは(10)式で与えられているので、表面に局在した振動モードはこのギャップの中に現れることがわかる (図2(b))。また、単位胞中の2つの原子の振幅比は

$$\frac{u^{(2)}}{u^{(1)}} = -\frac{M_1}{M_2} \quad (36)$$

と計算される。このモードは、発見者にちなんで Wallis モード [6] と呼ばれる。

$M_1 = M_2$ の極限をとると、この解は減衰解ではなくなるが、同時に周波数ギャップも消滅する。この場合、鎖は1次元単原子格子になっており、単位胞の大きさが半分になるため

である。このとき対応する Brillouin 域の大きさは2倍となっていて、 $k = \pi/a$ は Brillouin 域の境界上の点ではなくなっている。

(24) 式および (33) 式から、周期性を壊している原子の質量が他よりも軽い場合に限って局在モードが出現することがわかるが、このことは定性的に次のように説明される。1 個の原子がバネにつながれている場合、その固有振動数は質量の平方根に反比例する ($\omega = \sqrt{K/M}$) ので、一般に軽い原子は早く振動し重い原子はゆっくり振動すると言うことができる。従って、不純物原子（あるいは表面の原子）がまわりの原子よりも重い質量をもつ場合には、まわりの原子は不純物原子の遅い運動についていけるが、逆に軽い場合にはその早い運動に追従できず、結局のところ振動は減衰してしまうということになる。

3 連続弾性体としての取扱い：弾性波動論

考えているフォノンの波長が格子定数に比べて十分長い場合、そのフォノンは格子の離散性を感じることはなく、従ってよい近似で固体を連続体とみなすことができる。実際、図 2(a) において、長波長の領域で分散関係は線形 ($\omega \propto k$) となっており、音波のそれに等しい。ある周波数のフォノンに対して連続弾性体近似がよい近似であるか否かということは、分散関係の線形性が成り立っているかどうかで判断できる。例えば、GaAs 等のバルクな固体の場合、この線形性は 1 THz 程度の周波数領域まで保たれており、数 THz の高周波数になって初めて線形からのずれが現れる [7]。従って、sub-THz 程度以下の周波数のフォノンを考える際には、固体を連続弾性体として扱うことが可能となる。そこで、この章では固体を連続弾性体とみなした場合の取扱いについて簡単にまとめておく。

Kittel の教科書「Introduction to Solid State Physics」の第 7 版 [8] では、第 5 版と 6 版で省かれていた弾性定数と弾性波の取扱いに関する記述が約 20 年ぶりに復活した。弾性定数の実験的決定の節が除かれてはいるが、ほぼ第 4 版そのままの形で記載されており（但し、第 4 版では独立した章であったものが Crystal Binding の章と合わさって 1 つの章となっている）、手頃な入門書として便利である。詳しいことは、この Kittel の教科書や他の弾性論の教科書 [9, 10] を参照していただきたい。

弾性体とは、Hooke の法則を満たす媒質として定義されている。Hooke の法則は「歪みは直接応力に比例している」ということを述べているが、元々は原子間の相互作用に対する調和近似からでてきたものなので、歪みが小さい場合にのみ適用できる：

$$s_{ij} = C_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (37)$$

ここで、 s_{ij} は応力テンソル ($i = 1, 2, 3 = x, y, z$) で、圧力の次元を持つ。また、 ϵ_{kl} は歪みを表し、変位 u_i を用いて

$$\epsilon_{kl} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l}{\partial x_k} \right) \quad (38)$$

と定義されている。4 階のテンソル C_{ijkl} は弾性定数で、36 個の独立な成分からなるが、たとえば立方晶の場合には、 $C_{1111} = C_{2222} = C_{3333} \equiv C_{11}$, $C_{1122} = C_{2233} = C_{3311} \equiv C_{12}$, $C_{1212} = C_{1313} = C_{2323} = \dots \equiv C_{44}$ が成り立つので、独立な成分はわずか 3 個になる。

弾性体内の微小体積要素に対して Newton の運動の第 2 法則と Hooke の法則を用いることにより、変位 u_i の従う運動方程式

$$\rho \ddot{u}_i = C_{ijkl} \partial_j \partial_l u_k \quad (39)$$

が導出される。また、この運動方程式を導くラグランジアンは

$$L = \int_V dV \mathcal{L}, \quad (40)$$

$$\mathcal{L} \equiv \frac{1}{2} [\rho \dot{u}_i \dot{u}_i - C_{ijkl} (\partial_j u_i) (\partial_l u_k)] \quad (41)$$

と表される。(41) 式の右辺の第 1 項は運動エネルギーで、第 2 項はポテンシャルエネルギーを表している。実際、(41) 式のラグランジアン密度 $\mathcal{L}$ を用いて Euler-Lagrange の運動方程式 [11] をたてると (39) 式が出てくることは容易に示すことができる。同様に、ハミルトニアンは

$$H = \frac{1}{2} \int_V dV [\rho \dot{u}_i \dot{u}_i + C_{ijkl} (\partial_j u_i) (\partial_l u_k)] \equiv \int_V dV \mathcal{H} \quad (42)$$

と表される。このハミルトニアンの時間変化を調べると

$$\begin{aligned} \frac{dH}{dt} &= \int_V dV [\rho \dot{u}_i \ddot{u}_i + C_{ijkl} (\partial_j \dot{u}_i) (\partial_l \dot{u}_k)] \\ &= - \int_V dV \partial_j P_j \end{aligned} \quad (43)$$

$$P_j \equiv -C_{ijkl} \dot{u}_i \partial_l u_k \quad (44)$$

となり、連続の方程式

$$\frac{d\mathcal{H}}{dt} + \text{div} \mathbf{P} = 0. \quad (45)$$

が得られる。ここで、(43) 式の導出の際に運動方程式 (39) を用いた。流体力学、電磁気学等でおなじみの連続の方程式は、ある密度の時間的変化の割合と、対応する flux あるいは流れの密度の発散の和がゼロとなることを示している。(42) 式の定義より $\mathcal{H}$ は弾性体のエネルギー密度を表しているので、(44) 式で定義された $\mathbf{P}$ は弾性エネルギーの流れの密度を表す量であることがわかり、音響ポインティングベクトル (Acoustic Poynting Vector) とよばれる [9]。この音響ポインティングベクトルは、フォノンの透過率や反射率を定義する際にも用いられる。

4 超格子中のフォノン

固体中のフォノンを取り扱うためのモデルとして、2 章では、おもりがバネによって 1 次元的に連結している鎖を考え、3 章ではそれとは対照的な連続体を考えてきた。この章では、超格子中の sub-THz フォノンを取り扱うが、この場合、超格子を構成している各々の層を連続弾性体とみなすことができる。ところが、多層構造のために各界面におけるフォノン変位が従う運動方程式は 1 次元鎖のものと同等になり、2 章の話と 3 章の話がつながることになる。また、超格子はある周波数帯のフォノンに対してポテンシャル障壁の役割を演ずることがわかり、超格子によって散乱されるフォノンの問題は「トンネル効果」の問題とみなすこともできる。その他、この章では、超格子中に生じる種々の局在フォノン、およびそれらの局在フォノンと外から入射してきたフォノンとの共鳴相互作用について考察するが、その際、透過係数・反射係数の位相がフォノンのダイナミカルな振る舞いに関して重要な意味を持つ。

4.1 フォノン分散関係：連続弾性体近似とトランスフォーマトリックス

最近の実験においては数百 GHz 程度の周波数をもつフォノンが励起され、その伝播特性が研究されている。sub-THz フォノンの平均自由行程は、低温において 0.1mm のオーダー以上であることが実験的に示されているので、このフォノンは典型的な大きさの試料の中をバリスティックに伝播すると考えてよい。つまり、超格子の界面以外での散乱の効果は無視できる。3章で述べたように、GaAs, AlAs 等のバルクな半導体におけるフォノンの分散関係は、この周波数領域で線形であるので、GaAs/AlAs 超格子等の各層内において連続弾性体近似がよい精度で適用できる。つまり、このフォノンは超格子の長周期構造を感じるが、各層内における 1 個 1 個の原子の周期性は感じない、そのようなフォノンを考えているということである。また、ここでは簡単のために入射フォノンが超格子の界面に垂直に入射する場合を考える。このとき、3つのフォノンモードはお互いにデカップルし、それぞれのモードを独立に取り扱うことができる。以上のような状況を考えると、解析的な取扱いが可能になる [12, 13]。

連続弾性体近似の範囲内においては、超格子の各層内のフォノン変位は単に前進する平面波と後進する平面波の和で表される：

$$U_i(z) = c_i^t e^{ik_i z} + c_i^r e^{-ik_i z} \quad (46)$$

ここで添字 i は、超格子の構成層を区別する記号であり、 $k_i = \omega/v_i$ は各層（音速： v_i ）において定義される波数である。また、対応する応力は

$$S_i(z) = i\omega Z_i (c_i^t e^{ik_i z} - c_i^r e^{-ik_i z}) \quad (47)$$

と表される。ここで、 Z_i は音響インピーダンスとよばれる量であり、密度 ρ_i と音速 v_i の積で定義されている。この変位と応力には、それぞれ超格子の全ての界面で連続でなければならないという境界条件が課されるが、この条件を取り扱う際にはトランスフォーマトリックス法を用いるのが便利である。超格子の各界面に 0, 1, 2, ... と番号をつけたとき、 i 番目の界面における変位と応力を、 $i-1$ 番目の界面におけるものと関係づけるのがトランスフォーマトリックス T_i である：

$$\begin{pmatrix} U_i \\ S_i \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(\omega d_i/v_i) & \frac{1}{\omega Z_i} \sin(\omega d_i/v_i) \\ -\omega Z_i \sin(\omega d_i/v_i) & \cos(\omega d_i/v_i) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} U_{i-1} \\ S_{i-1} \end{pmatrix} \equiv T_i \begin{pmatrix} U_{i-1} \\ S_{i-1} \end{pmatrix}, \quad (48)$$

ただし、 i 番目の層の厚さを d_i とし、その層の両側の界面に $i-1$ 、 i と番号をつけている (図 7(a))。超格子の基本周期は A 層と B 層からなるので、基本周期に対するトランスフォーマトリックスは $T_{BA} \equiv T_B T_A$ で与えられる。ここで改めて基本周期ごとの界面に $n = 1, 2, 3, \dots$ と番号付けをし (図 7(b))、 n 番目の界面において U_n と S_n を成分とするベクトル $\mathbf{W}_n$ を定義すると、

$$\mathbf{W}_{n+1} = T_{BA} \mathbf{W}_n \quad (49)$$

と書くことができる。すなわち、 T_{BA} は $\mathbf{W}_n$ を 1 周期分だけずらす並進演算子である。完全に周期的な超格子を考えることにし、周期的境界条件 $\mathbf{W}_{n+N} = \mathbf{W}_n$ を用いると、Bloch の定理

$$\mathbf{W}_{n+1} = e^{ikD} \mathbf{W}_n. \quad (50)$$

を用いることができる。ここで、 $D = d_A + d_B$ は単位周期長（格子定数）、 k は Bloch 状態を指定する波数で (4) 式の a を D で置き換えたものである。[この証明は、群論の知識を少しばかり使うと簡単である。 $T_{BA}, T_{BA}^2, \dots, T_{BA}^N$ が、巡回群をなすことはすぐわかる。巡回群の規約表現は 1 次元であり、しかも周期的境界条件よりその指標は 1 の N 乗根でなければならないことから導かれる。] (49) 式と (50) 式を用いることにより、超格子の分散関係

を得ることができる [14, 15]。あるいは (49) 式から応力 S の項を消去することにより、変位 U のみの関係式

を得ることができるが、この式は形式的に1次元鎖の運動方程式に等しく、2章で行ったように

といて (52) 式に代入しても (51) 式を導くことができる。(52) 式はまた、1 次元 tight-binding モデルの Schrodinger 方程式に形式的に等価である (図 7(b) 参照。また、E は定数ではなく周波数依存性があることをおぼえておく必要がある)。

- 338 -

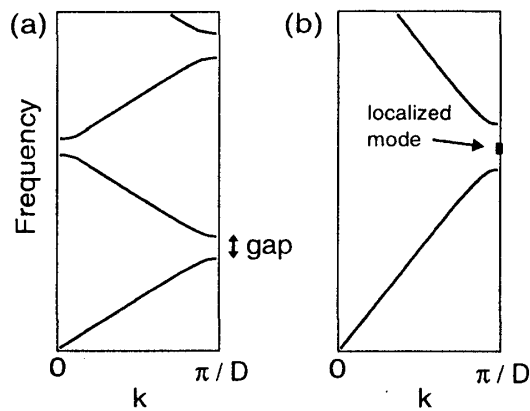


図 8: 超格子のフォノン分散関係

図 8 は、定性的に次のように説明できる。超格子構造を作成するということは、固体に長周期構造を導入するということを意味する。バルクな固体の格子定数を a とし、超格子の基本周期長はその N 倍の $D = Na$ とすると、単位胞の大きさが N 倍になったことに対応して逆格子ベクトルおよび Brillouin 域の大きさは $1/N$ となる。従って、超格子の分散関係は、バルク結晶の分散関係を超格子の長周期に対応するブリルアン域（ミニブリルアン域とよばれる）に折り返すことによって得られる。折り返すというのは、ミニブリルアン域の外にある分散曲線を、超格子の逆格子ベクトルの整数倍だけずらしてミニブリルアン域の内側にもってくることである。そして、ミニブリルアン域の端と中心において周波数ギャップが生じ、フォノンのバンド構造が生じる。ギャップの出現は、本質的に超格子の長周期構造による波動の Bragg 反射によるものであるので、フォノンであろうが電子であろうが、また電磁波であっても事情は全く同じである。

4.2 透過率と反射率：Bragg 反射とトンネル効果

前節では、超格子は完全に周期的で、その周期数は非常に大きいものと仮定し、周期的境界条件を課すことによって分散関係を求めた。しかしながら、現実には作成される超格子は完全な周期性をもっていない。普通の結晶における 10^8 程度の周期数にくらべると、超格子の周期数は 10^2 程度と文字通り桁はずれに小さく、それだけ系が有限であることの効果が顕著に現れるであろう。また、超格子は必ず基板や検出層あるいは真空中に接しており、さらに一般には不純物を含んでいたり層厚が揺らいでいる。従って、より現実的な理論計算としては、有限の大きさの系を対象としなければならない。理論的に取り扱いやすく直接実験と比較できるものに透過率、反射率がある。これらを計算するために前節で導入したトランスファーマトリックス法を用いる。

図 9(a) に示すような状況を考えることによって透過率・反射率は定義される。この問題は、量子力学の教科書にでてくる、1次元の箱形ポテンシャルによる電子の散乱問題（図 9(b)）と同様に取り扱うことができる（定常散乱問題）。基板側から界面に垂直にフォノンを入射

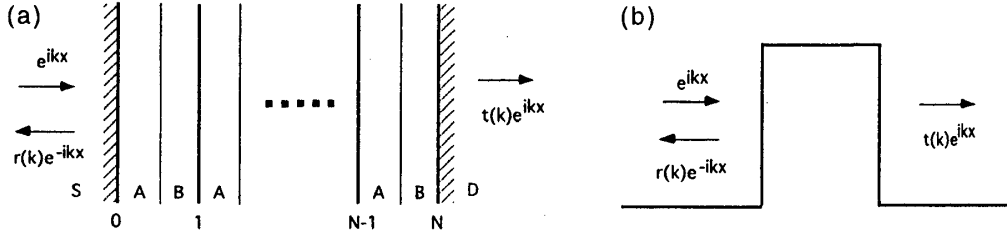


図 9: (a) 基板と検出層にはさまれた超格子, (b) 1次元箱形ポテンシャル

すると、その一部は超格子によって反射されるので、基板領域Sにおけるフォノン変位は

$$U_S = e^{iksx} + r e^{-iksx} \quad (54)$$

と表され、検出層Dにおいては反射波は存在しないので

$$U_D = t e^{ik_D x} \quad (55)$$

と表される。応力に関しても同様で

$$S_S = i\omega Z_S (e^{iksx} - r e^{-iksx}) \quad (56)$$

$$S_D = i\omega Z_D t e^{ik_D x} \quad (57)$$

と表される。この境界条件の下で、各構成層において定義された変位と応力をすべての界面で接続していき、透過係数 t と反射係数 r を求めることになる。トランスファーマトリックスを用いると基板・超格子界面における $\mathbf{W}_0$ は超格子・検出層界面における $\mathbf{W}_N$ と次のような関係式を満たす:

$$\mathbf{W}_N = T(N)\mathbf{W}_0, \quad T(N) \equiv (T_{BA})^N \quad (58)$$

いまの場合、 T_{BA} は 2×2 行列なので N 周期の超格子に対するトランスファーマトリックス $T(N)$ も解析的に計算できる [12]:

$$T(N) \equiv \begin{pmatrix} T_{11} & \frac{1}{\omega Z_A} T_{12} \\ \omega Z_A T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\lambda - \mu}{2} S(N) + C(N) & \frac{1}{\omega Z_A} \sigma S(N) \\ \omega Z_A \zeta S(N) & -\frac{\lambda - \mu}{2} S(N) + C(N) \end{pmatrix} \quad (59)$$

ここで、 $S(N), C(N)$ は、 $\frac{1}{2}\text{tr}(T_{BA}) \leq 1$ の場合、

$$S(N) = \frac{\sin N\theta}{\sin \theta}, \quad C(N) = \cos N\theta, \quad \cos \theta \equiv \frac{1}{2}\text{tr}(T_{BA}) \quad (60)$$

で与えられ、 $\frac{1}{2}\text{tr}(T_{BA}) > 1$ の場合には

$$S(N) = (\pm)^{N+1} \frac{\sinh N\theta}{\sinh \theta}, \quad C(N) = (\pm)^N \cosh N\theta, \quad \cosh \theta \equiv \frac{1}{2}|\text{tr}(T_{BA})| \quad (61)$$

である。±の符号は $\text{tr}(T_{BA})$ の符号に対応している。また、 $\lambda, \sigma, \zeta, \mu$ は、 T_{BA} の行列要素を表す：

$$\lambda = \cos \alpha \cos \beta - \frac{Z_A}{Z_B} \sin \alpha \sin \beta, \quad \sigma = \sin \alpha \cos \beta + \frac{Z_A}{Z_B} \cos \alpha \sin \beta, \quad (62)$$

$$\zeta = -\sin \alpha \cos \beta - \frac{Z_B}{Z_A} \cos \alpha \sin \beta, \quad \mu = \cos \alpha \cos \beta - \frac{Z_B}{Z_A} \sin \alpha \sin \beta. \quad (63)$$

ここで、 $\alpha = \omega d_A / v_A, \beta = \omega d_B / v_B$ である。(60),(61) 式において場合分けが必要になったのは、各パラメータが実数になるように定義したことによる。以上の表式を用いると、透過係数 t と反射係数 r は次のように表される：

$$t = \frac{2i}{\left(\frac{Z_D}{Z_A} T_{12} - \frac{Z_A}{Z_S} T_{21}\right) + i \left(T_{22} + \frac{Z_D}{Z_S} T_{11}\right)} e^{-ik_D N D}, \quad (64)$$

$$r = \frac{\left(\frac{Z_D}{Z_A} T_{12} + \frac{Z_A}{Z_S} T_{21}\right) + i \left(T_{22} - \frac{Z_D}{Z_S} T_{11}\right)}{\left(\frac{Z_D}{Z_A} T_{12} - \frac{Z_A}{Z_S} T_{21}\right) + i \left(T_{22} + \frac{Z_D}{Z_S} T_{11}\right)}. \quad (65)$$

透過率 T (反射率 R) は、入射フォノンと透過 (反射) フォノンのポインティングベクトルの比で定義され、透過係数 (反射係数) の絶対値を用いて

$$T = \frac{Z_D}{Z_S} |t|^2 \quad (R = |r|^2) \quad (66)$$

と表される。

数値例として、GaAs/AlAs 超格子に対して計算したフォノン透過率を図 10(a) に示す [16]。周波数ギャップ (ストップバンド) 中のフォノンに対しては透過率はかなり小さな値となる。

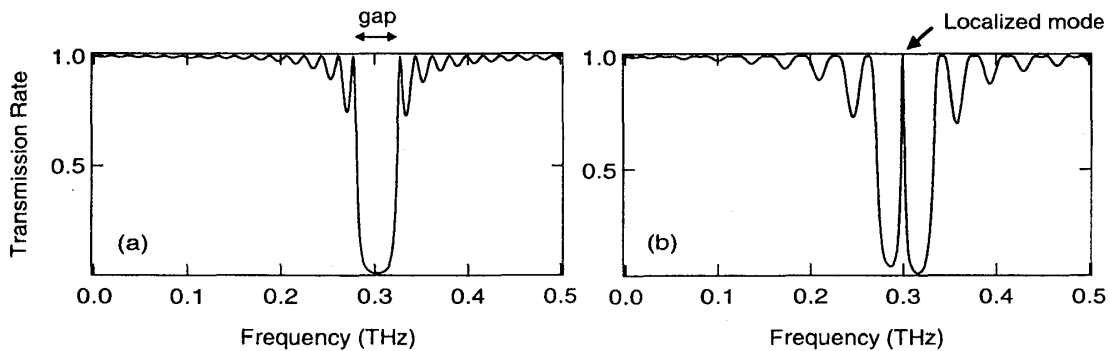


図 10: 超格子のフォノン透過率

これは、フォノンの Bragg 反射、すなわち超格子の各界面からのコヒーレントな反射に対応している。透過率の曲線はなめらかに変化しているし、そもそもバンドやギャップという概念は完全な周期を持つ結晶に対して周期的境界条件を用いて計算した結果でできた概念であるので、いま考えている有限の大きさの系の場合、一見、ギャップを厳密に定義できないと思うかもしれないが、フォノン振幅が減衰するかしないかで周波数ギャップとバンドを厳密に定義できる。(60)、(61) 式で定義される θ は、(51) 式と比較することにより、Bloch

波数を表していることがわかる。(60) 式はバンドの中、(61) 式はギャップの中における表式である。前節で述べたように、完全な周期性を持つ超格子においては虚数の波数は許されなかった。しかしながら、透過率は、図 9(a) に示したように超格子に基板と検出層を付けることによって初めて定義される。このとき、超格子と基板あるいは検出層との界面で周期性が壊れているので、虚数の波数、すなわち減衰解が許される。(61) 式で定義される θ はそのような解の減衰率である。言い換えると、ギャップ中の周波数を持ったフォノンを基板側から超格子に入射してやると、フォノンはその変位を指数関数的に減衰させて超格子内部に侵入していくということである。超格子のサイズ（周期数）があまり大きくない場合、完全に減衰してしまう前に検出層に達し、その結果透過率は有限の値をとる。ここでは詳しい計算は省略するが、先ほど導出した厳密解からスタートして、減衰パラメータの周波数依存性も解析的に explicit な形で導出することができ、ギャップの中心では大きな値を取って早く減衰し、ギャップの端近傍ではほとんど減衰しないことを示すことができる。

いずれにせよ、周波数ギャップ内のフォノンに対しては、超格子の内部での波数 (Bloch 波数) は虚数であり、一方、基板と検出層の領域では実数である。この問題は、まさに、図 9(b) に示した 1 次元箱型ポテンシャルをトンネルする電子の問題と等価であることがわかる。

4.3 共鳴トンネル効果：不純物層を含んだ超格子

4.2 では、周期多層構造を透過するフォノンの問題と、ポテンシャル障壁 (barrier) をトンネルする電子の問題とは本質的に等価であることという話をした。電子が一つの障壁に散乱されるとき、波動関数は障壁内で指数関数的に減衰するために透過率は一般にかなり小さな値となる。従って、電子がトンネルするといっても、実際にトンネルが起こる確率はそれほど大きいものではない。しかしながら、図 11(a) に示すように障壁を 2 つ用意してやると事情は異なってくる (2 重障壁構造)。2 つの障壁に挟まれた井戸の中に離散的なエネルギー準位 (準定常状態) が生じ、入射電子のエネルギーがこの準位に一致すると共鳴的に透過率 1 でトンネルするのである (完全透過)。この準定常状態は、2 つの障壁の間に電子が閉じこめられた際に生じる、(右向き進む電子波と左向きに進む電子波の干渉による) 定在波に対応している。

この共鳴トンネル効果をフォノン系で見るには、図 11(b) に示すように周期超格子を 2 つ直列に並べてやればよい。ここでやるべきことは、基板 S と検出層 D に挟まれた系のトランスファーマトリックス T_{DB} を求めることである。その行列要素を (64) と (65) 式に代入してやれば透過係数と反射係数を得ることができる。一つの周期超格子に対するトランスファーマトリックス $T(N)$ は (59) 式に与えられている。2 つの超格子に挟まれたバルクな部分のトランスファーマトリックス T_{Bulk} は (48) 式にあるものを使えばよい。系全体のトランスファーマトリックス

$$T_{DB} = T(N)T_{Bulk}T(N) \quad (67)$$

の表式を求めるには、3 つの 2×2 行列の積を計算するだけであるが、結果は少々複雑になるので、ここで具体的に式を書き下すのはやめておく (explicit な表式は文献 [13] に与えられている)。図 10(b) には、数値例として、超格子部分として (100)GaAs/AlAs 超格子、バルク部分を AlAs とした 2 重障壁構造に対するフォノン透過率が示してあり、ギャップ中に共鳴トンネル効果に起因した鋭いピークが出現しているのがわかる。

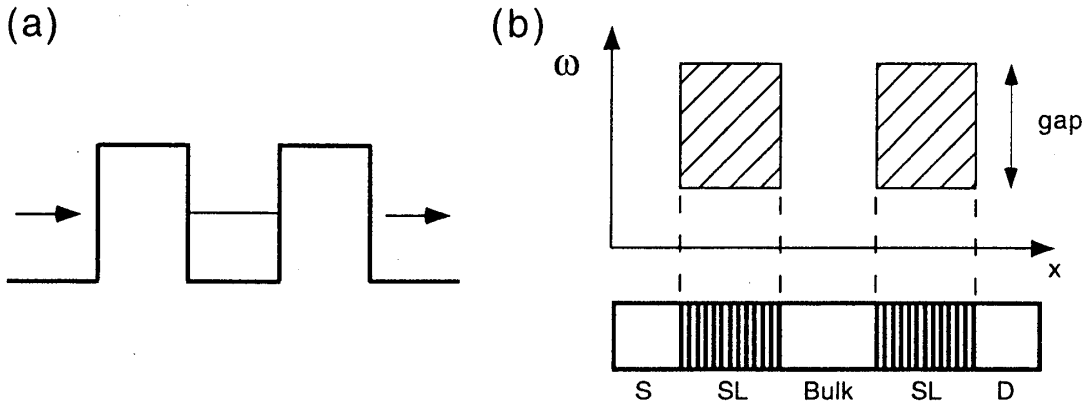


図 11: 2重障壁構造

単一障壁系の場合、ギャップ中のフォノンに対するトランスフォーマトリックスの各行列要素は (59)、(61) 式からわかるように $e^{N\theta}$ の項が支配的となる。従って、ギャップ中の透過率は、(64) と (66) 式から $e^{-2N\theta}$ に比例した小さな値となる。一方、2重障壁構造の場合には、(64) 式の分母に現れる $e^{N\theta}$ の係数が単純な形ではなくて、ある特定の周波数に対して 0 となり、ギャップ中であるにも関わらず透過率が 1 となる。この特定の周波数が共鳴周波数である。実際、以上の手順に従って共鳴周波数を求めることができるが、ここでは、それとは異なる方法で計算してみよう。

今考えている系はまた、周期超格子に 1 つのバルク層が埋め込まれたことによってその周期性が壊された系、と見なすことができる。すなわち、2.3 で考えた問題と同様な取扱いができるはずである。(52) 式を導出したときと同様に応力 S_n の項を消去することによって変位 U_n の従う方程式

$$\begin{aligned} U_{j-2} + \varepsilon_1 U_{j-1} + (1+V)U_j &= EU_{j-1}, \\ (1+V)U_{j-1} + \varepsilon_2 U_j + U_{j+1} &= EU_j, \\ U_{n-1} + U_{n+1} &= EU_n \quad (n \neq j-1, j). \end{aligned} \quad (68)$$

を得ることができる。ここで、

$$V = \frac{\sigma}{\sin(\omega d_C/v_C)} - 1, \quad \varepsilon_1 = \lambda - \sigma \cot(\omega d_C/v_C), \quad \varepsilon_2 = \mu - \sigma \cot(\omega d_C/v_C). \quad (69)$$

であり、 d_C, v_C はバルク部分の厚さと音速を表す。(68) 式は、2 つの隣り合う不純物を含んだ Tight Binding 鎖の Schrodinger 方程式に形式的に等価である (図 12)。この不純物問題を解くには完全に周期的な Tight Binding 鎖のハミルトニアン

$$H_0 = \sum_n \{|n+1\rangle\langle n| + |n\rangle\langle n+1|\}, \quad (70)$$

に摂動項

$$H_1 = \varepsilon_1 |j-1\rangle\langle j-1| + \varepsilon_2 |j\rangle\langle j| + V\{|j-1\rangle\langle j| + |j\rangle\langle j-1|\}. \quad (71)$$

が加わったとして、Green 関数法を用いて局在準位を計算するというのが一般的であろう [17]。Koster-Slater モデルの問題 [18] を少し複雑にした問題である。もちろん、(69) 式で定

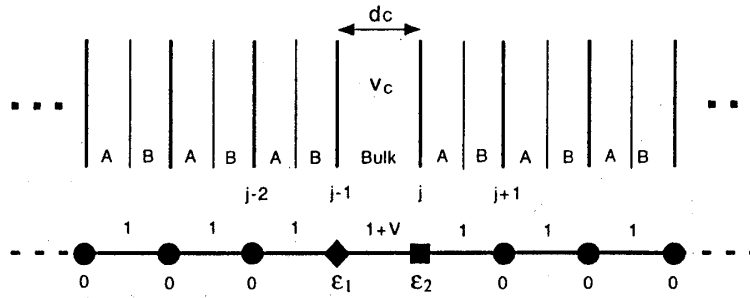


図 12: 不純物層を 1 層有する超格子と等価な Tight Binding 鎖

義された各パラメータと E は周波数の関数であるので、問題を解いた後に (69) 式を用いて変数を元に戻してやる必要があるのは言うまでもない。

もっとも、Green 関数の嫌いな人は 2.3, 2.5 節で行ったような簡単な方法で解くことも可能であり、もちろん同じ結果を得ることができる。減衰解を

$$U_n = \gamma^{n-j} U_j \quad (n \geq j) \quad (72)$$

$$U_n = \gamma^{-(n-j+1)} U_{j-1} \quad (n < j) \quad (73)$$

の形に仮定して、(68) 式に代入すると

$$\gamma^2 - E\gamma + 1 = 0, \quad (74)$$

$$\gamma^2 + (\varepsilon_1 + \varepsilon_2 - 2E)\gamma + E^2 - (1+V)^2 = 0 \quad (75)$$

が得られる。ここで、元のパラメータに戻してやると (74) 式からは減衰率

$$\gamma = \pm e^{-\theta} \quad (76)$$

がもとまり、(75) と (76) 式から、局在モードの固有振動数を定める方程式

$$\pm \frac{\zeta - \sigma}{2 \sinh \theta} = -\cot(\omega d_C / v_C) \quad (77)$$

が得られる。ここまでは厳密な話であるが、GaAs/AlAs 超格子等のように構成層 A, B の弾性的性質がそれほど異ならない場合、音響ミスマッチを表す量 $\varepsilon = Z_B / Z_A - 1$ を定義し、種々のパラメータをこの ε で展開して高次の項を落とすことにより explicit な表式を導出することも可能である。詳しい計算過程は省略するが、バルク層に局在した振動モードの固有振動数は

$$\omega_{imp} = \omega_m \pm \Delta_m \cos(\omega_m d_C / v_C) \quad (78)$$

と表される。ここで、 ω_m は m 次の Bragg 周波数

$$\omega_m = m\omega_1 = m\pi(d_A/v_A + d_B/v_B)^{-1} \quad (79)$$

であり、 m 番目のギャップの中心周波数である。また、 $2\Delta_m$ がギャップの幅で、

$$\Delta_m = (\omega_1 / \pi) |\varepsilon \sin(\omega_m d_A / v_A)| \quad (80)$$

と表される。ただし、(78) 式における符号は、

$$\pm \varepsilon \sin(\omega_m d_A / v_A) \cos(\omega_m d_C / v_C) \tan(\omega_m d_C / v_C) > 0 \quad (81)$$

が成り立つように選んでおかなければならない ((78) 式と複号同順)。

(78) 式から、局在モードの固有振動数はギャップ中に現れること、またバルク層の厚さと共にどのように変化するかといったことも明確に説明できる。特に断っておかなかったが、(68) 式以降の取扱いでは、超格子の周期は無限に大きいと仮定してきた。図 11(b) に示した系においては、超格子の周期数が有限であるために、局在モードの固有振動数は (78) 式に示した値からずれるが、ずれの大きさはかなり小さい。従って、細かい値を議論する必要のない場合には、(78) 式を用いれば十分である。

4.4 表面局在振動と位相時間：真空中に接した超格子

不純物局在振動の次は、超格子の表面に局在した振動モードを考察してみよう。4.2 で取り扱った系の検出層部分を取り除いて表面を作り、やはり基板側からフォノンを入射する状況を考える。(図 13(a))。この場合、基板側から超格子に入射したフォノンは全て反射され

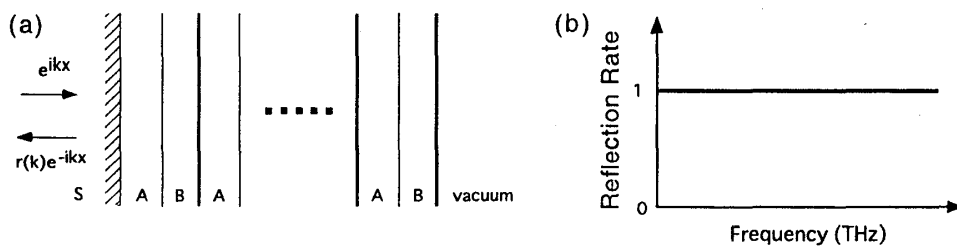


図 13: (a) 真空中に接した超格子, (b) フォノン反射率

る。周波数ギャップ中のフォノンは表面にたどりつく途中で Bragg 反射され、一方周波数バンド中のフォノンは減衰せずに表面まで伝播できるがそこから先は真空なので結局は戻ってくるしかない。つまり、入射フォノンの周波数にかかわらず（また超格子中に不純物が含まれていようがいまいが、さらには考えている系が超格子であろうがなかろうが）、このような反射実験を考える限りにおいてはフォノンの反射率は厳密に 1 となる (図 13(b), ただしここでは垂直入射の場合を考えていることを忘れてはならない。斜入射の場合にはモード変換が生じるので、たとえば縦波を入射した場合、縦波あるいは横波として戻ってくるフォノンの反射率は、それぞれ周波数依存性を持つ。もちろん、各モードの反射率の和をとると全ての周波数に対して厳密に 1 となる)。従って、このような反射実験を用いて超格子中のフォノンの振る舞いを調べることは一見無意味に思われる。しかしながら、入射フォノンと超格子系との相互作用に関する情報は、全て反射係数に含まれているはずである。ここで、思い出さなければならないのは、反射率は反射係数の絶対値の 2 乗で定義されているということである。従って、反射係数の位相部分が重要な意味をもってくる。反射係数の位相は、フォノン波束のダイナミカルな性質に関連している。より詳しくいうと、この位相の周波数微分で定義される「位相時間」とよばれる量が、入射フォノンが超格子系と相互作用することによって生じる時間遅れを表している。

4.4.1 位相時間

位相時間は、最初は、ポテンシャル障壁をトンネル効果で通り抜ける電子のいわゆる「トンネル時間」を議論するために導入され [19, 20, 21]、後にフォトンやフォノンにも適用されている。反射（或いは透過）係数の位相部分の周波数微分が、系との相互作用することによって生じる時間の遅れ（あるいは進み）を表すということは、フォノン波束を作ってみるとよくわかる。 x 方向に進む入射波束を平面波の重ね合わせで、

$$\psi_{inc}(x, t) = \int \frac{dk}{2\pi} \phi(k) e^{i(kx - \omega(k)t)}. \quad (82)$$

と表すと、波束が超格子と相互作用して十分に時間が経過した後では、反射波束は反射係数 $r(k) = |r(k)|e^{i\Theta_r(k)}$ を用いて

$$\psi_r(x, t) = \int \frac{dk}{2\pi} \phi(k) |r(k)| e^{-i(kx + \omega t - \Theta_r)}. \quad (83)$$

と表される。入射波束のフーリエ成分 $\phi(k)$ が、 $k = k_0$ にピークを持つと仮定すると、(83) 式の積分が大きな値をとるための条件は、

$$\left. \frac{d}{dk} (kx + \omega t + \Theta_r) \right|_{k_0} = 0, \quad (84)$$

により与えられ（定常位相の方法）、反射波束のピークは

$$x = -v \left(t - \left. \frac{d\Theta_r}{d\omega} \right|_{k_0} \right), \quad (85)$$

に従って運動することがわかる。ここで、 v は基板における音速を表す。(85) 式から、波束はちょうど時間

$$\tau = \left. \frac{d\Theta_r}{d\omega} \right|_{k_0}, \quad (86)$$

だけ遅れて（あるいは進んで）反射されて来たように見えることが理解できる。

4.4.2 反射位相時間と表面局在振動

真空に接した超格子 (図 13(a)) を取り扱う際に新たに考慮すべき境界条件は、超格子の表面で応力が 0 になるということである。この境界条件を用いることによって反射係数の解析解 [22] を得ることができる：

$$r = e^{i\Theta_r}, \quad (87)$$

ここで

$$\Theta_r = 2 \tan^{-1} \left[\frac{Z_S}{Z_A} \left(\frac{\mu - \lambda}{2} + \frac{C(N)}{S(N)} \right) \frac{1}{\zeta} \right], \quad (88)$$

である。(87), (88) 式を用いて具体的に計算した例として、(100)GaAs/AlAs 超格子の位相時間の周波数依存性を図 14 に示す（ここでは、周期数 $N=8$ として計算した）。図 14(a) は真空に接した層が AlAs の場合、図 14(b) は GaAs の場合である。位相時間は、 $\tau_0 = 2N(d_A/v_A + d_B/v_B)$

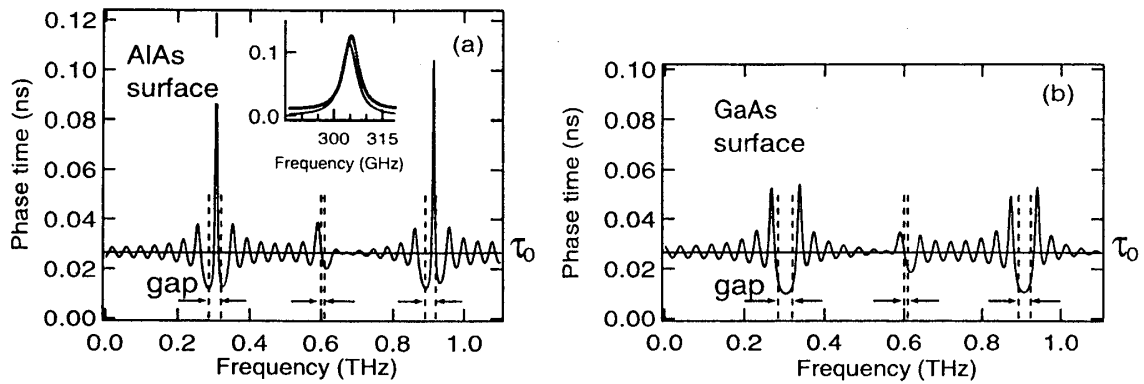


図 14: 位相時間

のまわりで振動している。この τ_0 は、基板から入射したフォノンが超格子と相互作用せずに表面まで伝播し、表面で反射されて基板まで戻ってくるのに要する時間である。

図 14(a) において最も特徴的なことは、1 番目と 3 番目の周波数ギャップ中に鋭いピークが見られることである。2 番目のギャップ中、および図 14(b) ではそのようなピークは見られない。また、図 14(a),(b) において、鋭いピークを除いたギャップ領域では、 τ は τ_0 よりかなり小さな値をとっているが、これは基板から入射したフォノンが Bragg 反射されたことを反映している。ギャップ中の周波数を持つ入射フォノンはその振幅を指数関数的に減衰させて超格子中に侵入できるため、その分の時間の遅れが生じる。ただし、表面までたどり着く以前に反射されているので、周波数バンド中のフォノンにくらべて反射時間が小さな値となるわけである。

反射係数の位相の解析的表式 (87), (88) は連続体近似が成り立つ範囲において厳密であり、具体的な系に適用して計算するには便利であるが、少々複雑であり、そのままの形では見通しがよくない。そこで、超格子を構成する A 層と B 層の音響インピーダンス Z_A, Z_B がそれほど異ならない ($\varepsilon = Z_B/Z_A - 1 \ll 1$) と仮定し、さらに表面局在モードはギャップの中心付近に現れることなどを考慮すると近似的ではあるが explicit な表式を導出することができる。その結果、反射位相時間 τ は m 番目の周波数ギャップ中において、

$$\tau = \frac{d\Theta_r}{d\omega} = \frac{2\Gamma_m}{(\omega - \tilde{\omega}_m)^2 + \Gamma_m^2}, \quad (89)$$

とローレンツ型で表される。ここで、共鳴周波数 $\tilde{\omega}_m$ 、およびピークの幅 Γ_m は

$$\tilde{\omega}_m = \omega_m + \frac{\varepsilon}{2\pi} \omega_1 \sin(2\omega_m d_A / v_A). \quad (90)$$

$$\Gamma_m = \frac{\omega_1}{\pi} \varepsilon \sin^2(\omega_m d_A / v_A) \left\{ 1 + \frac{\coth[N\varepsilon \sin(\omega_m d_A / v_A)]}{\sin(\omega_m d_A / v_A)} \right\}, \quad (91)$$

で与えられる。(90) 式と (91) 式は音響ミスマッチ ε の 1 次の範囲で正しい。図 14(a) の inset には、厳密解および近似式 (89)-(91) を用いて計算した 1 番目のギャップ中の位相時間が比較してあるが、両者はよく一致している（実線が近似式でドットが厳密解）。

(89) 式を見ると、全てのギャップ中に共鳴ピークが出現しそうだが、図 14 ではそうはなっていない。共鳴ピークが見えるためには、ギャップ幅にくらべてピークの幅がある程度小さ

くなければならない。 m 番目の周波数ギャップの幅 Δ_m は、同じ近似の範囲で (80) 式で与えられているので、ピークの見える条件 $|\Gamma_m/\Delta_m| \ll 1$ は、

$$|\sin(\omega_m d_A/v_A) + \coth[N\varepsilon \sin(\omega_m d_A/v_A)]| \ll 1, \quad (92)$$

と表される。この条件が満たされるためには、左辺の第 1 項と第 2 項が反対符号で同程度の大きさを持たなければならない。従って、まず、 ε は負でなければならないことがわかる。 $\varepsilon < 0$ というのは、真空に接している B 層の音響インピーダンスが、その内側の A 層のそれにくらべて小さい場合であり、図 14(a) が対応している。これはまさに、2.5 で述べた Wallis モードが出現するための条件である。

さらに、(92) 式の条件を満たすためには、 $(|\sin x| \leq 1, |\coth x| \geq 1)$ なので第 2 項の大きさはなるべく 1 に近い値をとる方がよい。これは

$$|N\varepsilon \sin(\omega_m d_A/v_A)| \gg 1 \quad (93)$$

と書くことができる。図 14(a) の 2 番目のギャップにおいては、(93) 式の条件が満たされてなかったのである（ちなみにこの場合、 $|\Gamma_2/\Delta_2| = 2.6$ ）。つまり、共鳴ピークはあるにはあるが、その幅が広がりすぎているために見えなかったというわけである。

4.4.3 入射フォノンと表面振動モードとの共鳴相互作用

ここまでで示したことは、 $\varepsilon < 0$ と (93) 式が同時に満たされた場合にのみ位相時間に共鳴ピークが見えるということであった。次にやるべきことは、この 2 つの条件が何を意味しているか、また共鳴ピークの起源は何かを明らかにしていくことである。

トランスファーマトリックス法により、共鳴周波数 $\tilde{\omega}_m$ におけるフォノンの変位は

$$U_n = [\mu(\tilde{\omega}_m)]^n U_0, \quad (n = 0, 1, 2, \dots), \quad (94)$$

と表されることがわかる。ここでは、 n は超格子の一周期ごとの界面に、表面から内部に向かって 0, 1, 2, ... と番号付けしてある。減衰パラメータ μ は ε の 1 次の範囲で

$$\mu(\tilde{\omega}_m) \cong (-1)^m [1 + \varepsilon \sin^2(\omega_m d_A/v_A)]. \quad (95)$$

と書くことができる。(95) 式から、 $\varepsilon < 0$ の場合には $|\mu| < 1$ なので、周波数 $\tilde{\omega}_m$ のフォノンは表面に局在していることがわかる（表面振動モード）。一方 $\varepsilon > 0$ の場合には、 $|\mu| > 1$ となり表面から内部に入るに従って指数関数的に増大する解となっている。逆に言うと、基板から内部に向かって指数関数的に減衰しているわけであるが、これは先に述べたようにギャップ中のフォノン一般について言えることである。従って $\varepsilon > 0$ の場合には $\tilde{\omega}_m$ は何ら特別な周波数ではなく、位相時間のピークも見られないのである。

(93) 式と (95) 式を見比べると、(93) 式は表面局在振動が系のサイズにくらべて表面付近によく局在しているための条件式となっていることがわかる。(95) 式から、 $\sin(\omega_m d_A/v_A) \cong 1$ の場合に最もはやく減衰し ($|\mu| \cong 1 + \varepsilon$)、 $\sin(\omega_m d_A/v_A)$ が小さな値をとる場合にはほとんど減衰しない ($|\mu| \cong 1$) ことがわかる。図 14(a) における 2 番目のギャップにおいては、実際、 $\sin$ の項が小さな値になっており、非常に弱く局在している振動モードになっている。 $\sin$ の項が小さいので、(93) 式も満たされていない。つまり、今考えているような有限系においては、

周波数 ω_2 のフォノンが超格子の端から端まで行ってもほとんど減衰せず、従って、バンドの状態と区別がつかなくなっているのである。 N が無限大の極限（表面を有する半無限周期超格子に対応）を考えると、 $|\mu|$ がほんのわずかでも1より小さければ減衰解としてバンド状態と区別され、(93)式も満たされて位相時間にピークが現れることになる。

4.4.4 フォノン波束の時間発展シミュレーション

表面によく局在した振動モードが生じる場合には、反射フォノンの位相時間に共鳴ピークが出現するというを示したが、ここでは、この共鳴的な時間の遅れをより直接的に理解し、また実験との対応を与えるためにガウス型波束の時間発展シミュレーションの結果を示す[23]。図15には、真空中に接した層が(a) AlAsの場合と(b) GaAsの場合についての結

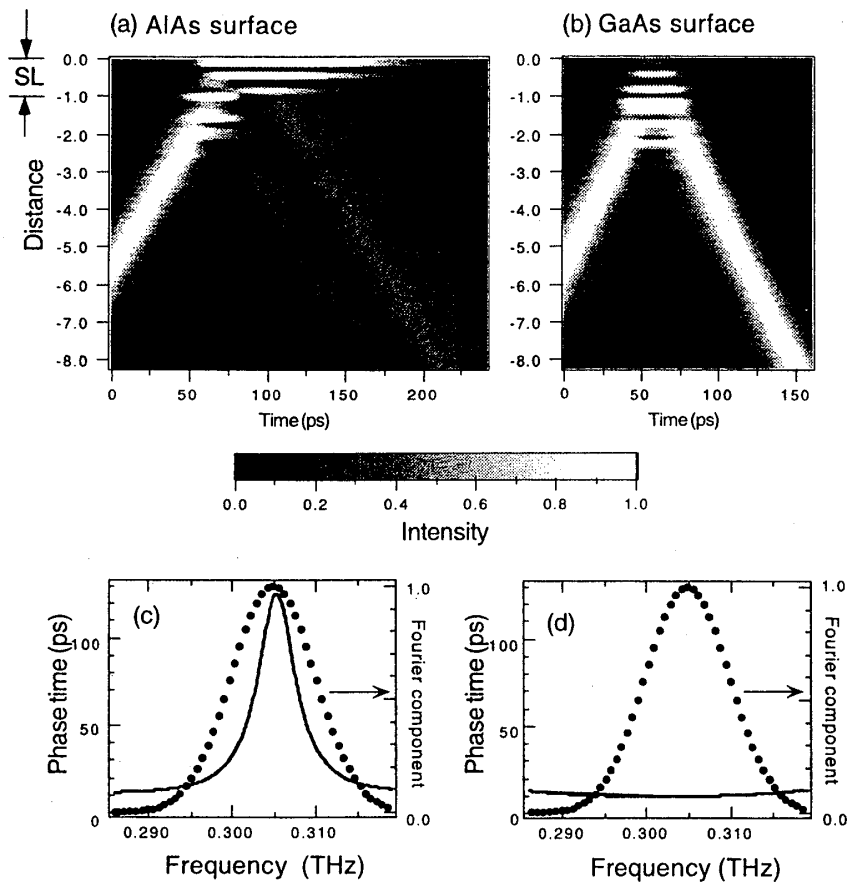


図 15: ガウス型フォノン波束の時間発展シミュレーション

果が示されている。また、入射波束のフーリエ成分が位相時間と共にそれぞれ図15(c), (d)に示してある。図15(a)を見ると、表面層がAlAsの場合($\epsilon < 0$ で表面振動モードが生じる場合)には、基板側から入射したフォノン波束が超格子系に入射すると、表面近くにしばらくの間トラップされていて、徐々にしみ出すように基板側に戻ってきている様子が見てとれる。このトラップされている時間(life time)が、共鳴的な時間の遅れに対応している。反射波束の形は、入射波束から著しく変化している。ここで用いたガウス型入射波束の場合、反

射波束のすそは指数関数型（近似的な解析解の導出も可能である）となり、より長く尾を引いている。一方、表面層が GaAs の場合には、このようなことは起こらず、超格子系と相互作用した後でも同じ形で何事もなかったかのように基板側に戻ってきているのがわかる。

4.5 トンネル時間

4.4 では、真空に接した超格子に基盤側からフォノンを入射する場合を考察した。この状況では、反射係数の絶対値の 2 乗で定義される反射率は全ての周波数に対して 1 となってしまうて全く役に立たないが、その位相（の周波数微分で定義される位相時間）を計算することによってフォノンの伝播特性を調べることができた。一方、4.2 や 4.3 では単一障壁および 2 重障壁構造におけるフォノンの透過率を計算したが、それらの系においては位相時間はどうなっていたのであろうか。ということで、ここで再び単一障壁系 (図 9(a)) と 2 重障壁系 (図 11) に戻って、それらの系における位相時間を調べてみたい。

4.5.1 単一障壁系

単一障壁に入射したフォノンの透過係数 $t \equiv |t|e^{i\Theta_t}$ と反射係数 $r \equiv |r|e^{i\Theta_r}$ はそれぞれ (64), (65) 式に与えられているが、厳密解はやはり見通しがよくない。ギャップの中に話を限り、適当な近似を用いるとこれらの位相時間の explicit な表式を得ることができる [24, 25]:

$$\tau_S^t \equiv \frac{d\Theta_t}{d\omega} = \frac{\pi}{\theta_m \omega_1} - \frac{L}{v_D} \quad (96)$$

$$\tau_S^r \equiv \frac{d\Theta_r}{d\omega} = \frac{\pi}{\theta_m \omega_1}. \quad (97)$$

ここで、 $L = ND$ は超格子のサイズを表し、 $\theta_m = |\epsilon \sin(\omega_m d_A / v_A)|$ である。(97) 式から、反射位相時間はつねに正であり、フォノンが単一障壁に散乱されてはね返ってきた場合、必ず時間の遅れが生じることがわかる。ところが、(96) 式によると、系のサイズがある程度大きいと透過位相時間は負になり、フォノンが障壁を透過する際には時間の進みが生じることを表している。例として、GaAs/AlAs 超格子に対して、厳密解 (64), (65) および近似解 (96), (97) を使って位相時間を計算した結果を図 16(a) に示す (実線が厳密解、点線が近似解)。透過フォノンと反射フォノンに対して、それぞれ 10 ps 程度の時間の進みと遅れが見られる。散乱過程において時間の遅れが生じることとはまあいいとして、一体、この時間の進みとはどういうことであろうか。

実は、光子に対しては、この問題はトンネル時間の問題としてよく知られており、現在でもなお議論がなされている [26]。4.2 でフォノンの透過係数の解析解を導出した過程からもわかるようにこの時間の進みは純粹に波の干渉効果に起因している。従って、光子がトンネルする際にも全く同じことが起こる。その結果、トンネルした光子は光速より速く伝わるということになり、因果律に反するのではないかということになる。

この問題は、元々、電子が障壁をトンネルするのにかかる時間はどれくらいかという単純な問題設定から始まっている。ポテンシャルバリアの領域では運動エネルギー $p^2/2m$ は負となっているので、運動量 p あるいは速度 $v = p/m$ が虚数になり、ある距離だけ進むのに必要な時間が明確に定義できないということになる。無論これは、粒子に対して用いられる概

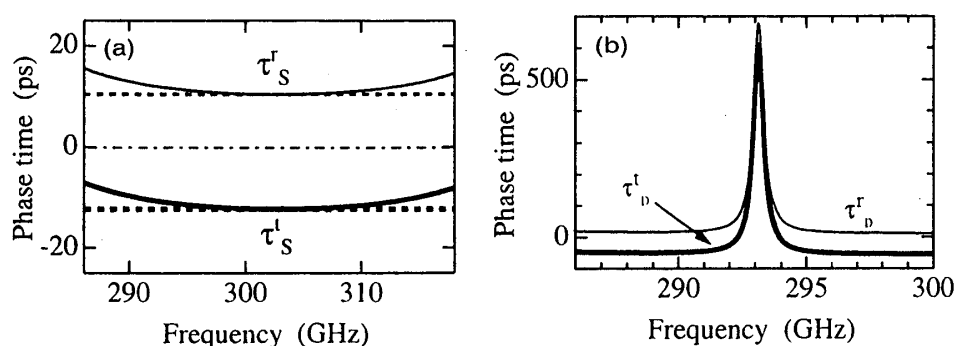


図 16: 透過位相時間 (a) 単一障壁系; (b) 2 重障壁系

念を波に対して用いているために生じる困難である。序論でも述べたが、トンネル効果とは波動的な性質によって起こる現象である。そこでは古典的な意味での粒子の運動の軌跡という概念は存在しない。軌跡という概念なしにはある領域を通過する時間が定義できないということである。（トンネル時間を定義する試みはいろいろと行われている [20, 21] が、これ以上深入りしないことにする。）さらに、実際の実験結果を解釈する際には波束の収縮といった話にまで言及しなければならず、いわゆる観測問題にまで踏み込まなければならない。

一方、格子振動のような実在波の場合、問題は単純である。波束の収縮であるとか、非局所性等といったことは議論する必要がない。ここでは、「透過係数の周波数微分で定義される透過位相時間という量が負の値になった」という計算結果の意味を明らかにするために、図 17(a) にフォノン波束の時間発展シミュレーションの結果を示す [24, 27]。図には、基板

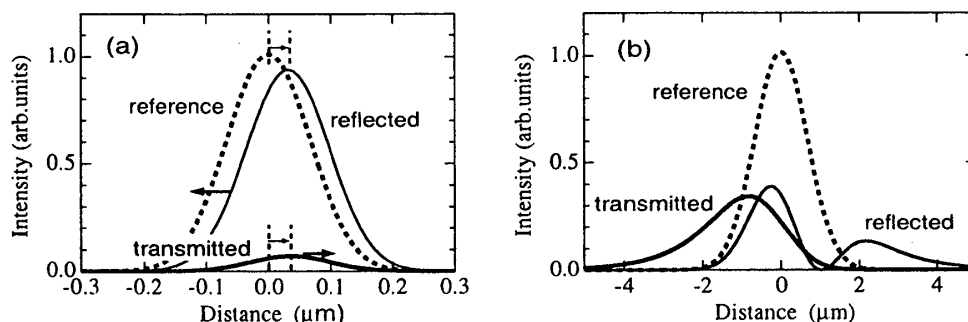


図 17: 透過・反射フォノン波束の漸近形: (a) 単一障壁系; (b) 2 重障壁系

側から障壁（周期超格子）に入射されたガウス型フォノン波束の、散乱後十分時間が経ったときの波形が示してある。点線で示した曲線は、障壁がこのフォノン波束に対して透明であると仮定して計算した結果である。この参照波束と、太線で書かれた透過波束との空間的なズレから時間の進みとか遅れといったことを議論することになる（反射波束（細線）と比較する際には、この参照波束は障壁の前面で完全反射されたものであると読み替える）。

そもそも位相時間とは、4.4.1 で示したように波束のピークが時間に換算してどれくらいずれているかを記述する量であった。実際、透過波束のピークの位置を見てみると参照波束

に比べて前方にシフトしており、その意味において、障壁をトンネルしてきた波束の方が速く進んでいるのがわかる。しかしながら、トンネルする確率は一般に小さいので、透過してきた波束の大きさは随分と小さくなっている。透過波束を参照波束と全体にわたって比較してみると、全ての場所において、参照波束よりも大きな値を持つところはない。従って、透過波束のピークのシフトに関しては、次のように説明するのが適切であると思われる：波束が障壁をトンネルする際に、波束の後ろの部分が前の部分よりも余計に削り落とされて、その結果として波束の重心が前方にシフトした。透過位相時間が負になるということは、このことを表しており、それ以上のことでもそれ以下のことでもない。それでは、なぜ波束の後半部分がより多く削られるかということであるが、全ては干渉効果に起因している。波の先端部分が障壁に到着したとき、その時点では反射波は存在しておらず、従って、干渉がおきる可能性はない。たまたま障壁を透過できた波は、山の高さは低くはなるが、干渉による影響は受けていない。それに対して、波束の後ろの部分に注目すると、その部分が障壁に到達する前に既に前半部分が反射されて戻ってきており、それらの間で干渉をおこし打ち消し合いが生じるということである。

4.5.2 2重障壁系

2重障壁に入射したフォノンの透過係数 $t \equiv |t|e^{i\Theta_t}$ と反射係数 $r \equiv |r|e^{i\Theta_r}$ に関してもギャップの中に話を限り、適当な近似を用いるとこれらの位相時間の explicit な表式を得ることができる [24, 25]:

$$\tau_D^t = \tau_S^t + T_D/\Gamma, \quad \tau_D^r = \tau_S^r + T_D/\Gamma. \quad (98)$$

ここで、 T_D は共鳴周波数付近での透過率の近似式で

$$T_D = \frac{\Gamma^2}{(\omega - \omega_{imp})^2 + \Gamma^2}. \quad (99)$$

と表される。これらの式において、添字の D は2重障壁を表し、単一障壁 S における表式と区別してある。また、 ω_{imp} の表式は (78) 式に与えてある。

2重障壁系における位相時間は、透過フォノンおよび反射フォノンの両方に対して、単一障壁系における表式と共鳴項との和というわかりやすい形に表されることがわかる。ただし、共鳴項が第1項に比べて非常に大きい値となり支配的となる。例として、GaAs/AlAs 超格子に対して、位相時間を計算した結果を図 16(b) に示す (この図のスケールにおいて厳密解と近似解との差は見られない)。

これらの位相時間は、局在振動モードの固有振動数のところで、600ps 以上の大きなピーク値を持っており、単一障壁の時の 10ps 程度の値とは桁違いに大きな値となっている。この大きな時間の遅れは、フォノン波束が2つの障壁の間で、何度も何度も繰り返し反射されることによって生じている。この反射によって、障壁の間の井戸の領域に定在波がたち、準定常状態になることは先に述べたとおりである。障壁の厚さは有限であるので、この障壁をトンネルする確率は0ではなく (もちろん0でないからこそ井戸の領域に入ってこられたわけであるが)、井戸の領域に閉じこめられたフォノンは、繰り返し反射されている間に通り返れることができる。その過程において波束の形は大きく変化し、長く尾を引くことになる。この井戸の中に閉じこめられている時間が時間の遅れ $\tau \sim 1/\Gamma$ に対応している。

5 おわりに

本稿では、「種々の超格子構造におけるフォノンの伝播特性」をメインテーマとしてとりあげ、基礎から詳しく説明することを心がけた。結果として「フォノン物性」のひとつの入門的解説となるよう筆者なりに試みたつもりであるが、ページ数や時間的な制約などもあり、このテキストに載せることのできなかった重要なことがらも多い。

例えば、ここでは波数ベクトルが超格子の界面に垂直な場合のみを考え、斜めに伝播する場合は取り扱わなかった。そのことによって複雑な数式を取り扱うことを避けることができ、見通しがよくなり、いくつかの見方、アプローチの仕方が可能になった。ここで用いた数学は初等的なものばかりで、荒っぽく言えば、平面波を繋いでいっただけ、と言えなくもないが、それだけのことで多くのことが議論できるということで教育的である。しかしながら、斜めに伝播する場合をまじめに取り扱わなければならない興味ある現象も多い。複数のモードが混じり合うことが本質的となる問題である（むしろ、1つのモードだけを考えれば話が済むような場合はまれである）。例えば、入射縦波と反射横波がBragg条件を満たす場合、入射した縦波は横波としてコヒーレントに反射される。このような mode conversion を伴う Bragg 反射を扱うには 6×6 のトランスフォーマトリックスを用意しなければならない。たとえ結晶に等方性を仮定したとしても 4×4 行列であるので、解析的な表式を求めることは期待できず、数値計算に頼ることになる（等方的な結晶を考えると、縦波と1つの横波が混じるだけで、もう一つの横波は独立に取り扱うことができる）。講義では、これらの数値計算の結果や、mode conversion を伴う Bragg 反射が生じる周波数ギャップの中に現れる局在モード、さらにはその局在モードに関連した共鳴効果、などについても話をするつもりである。

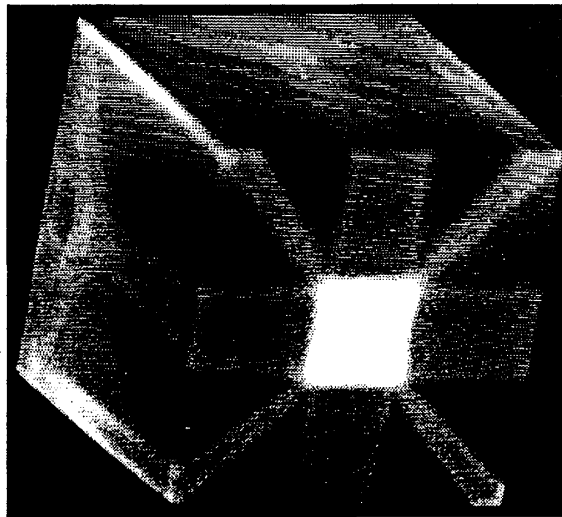


図 18: Ge 単結晶におけるフォノンイメージ

また、結晶の異方性が重要となってくる問題で興味あるトピックス、たとえば、フォノン集束効果、フォノンイメージング [28, 29] についても解説をおこなう予定である。フォノン集束効果とは、結晶の異方性のために群速度が方向によって異なり、その結果、結晶の特定な軸方向にフォノンエネルギーが集束するという現象である。このフォノン集束効果は

Northrop と Wolfe によって開発されたフォノンイメージング法によって直接目で見る事ができる。最後に、この方法によって実験的に得られた Ge 単結晶におけるフォノンイメージを図 18 に紹介しておく [30]。

参考文献

- [1] 栗原進編: シリーズ物性物理の新展開「トンネル効果」(丸善、1994); L.I. Schiff: *Quantum Mechanics*, 3rd edition (McGraw-Hill, 1968); E. Merzbacher: *Quantum Mechanics* (John Wiley & Sons, New York, 1970); D. Bohm: *Quantum Theory* (Prentice-Hall, New York, 1951)
- [2] V. Narayanamurti, H. L. Stormer, M. A. Chin, A. C. Gossard and W. Wiegmann: *Phys. Rev. Lett.* **43**, 2012 (1979); V. Narayanamurti: *Science* **213**, 717 (1981).
- [3] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin: *Solid State Physics* (Saunders College, Philadelphia, 1976),
- [4] 上村洸、中尾憲司: 新物理学シリーズ 29 「電子物性論」(培風館、1995)
- [5] 表面フォノンに関する日本語の解説書として、大島忠平: 「物理学最前線 30」(共立出版、1992) がある。
- [6] R.F. Wallis: *Phys. Rev.* **105**, 540 (1957).
- [7] S. Adachi: *GaAs and Related Materials: Bulk Semiconducting and Superlattice Properties* (World Scientific, 1994)
- [8] C. Kittel: *Introduction to Solid State Physics*, 7th edition (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1996), 同訳「固体物理学入門」(全2巻) 宇野良清、津屋昇、森田章、山下次郎 共訳 (丸善、1998)
- [9] B. A. Auld: *Acoustic Fields and Waves in Solids*, 2nd edition (Robert E. Krieger Publishing Company, Inc., Florida, 1990);.
- [10] 佐野理: 「連続体の力学」(裳華房、2000)
- [11] 連続的な系に対するラグランジュ形式とハミルトン形式に関しては H. Goldstein: *Classical Mechanics*, 2nd edition (Addison-Wesley Publishing Company, Inc., 1980) Chapter 12.
- [12] S. Mizuno and S. Tamura: *Phys. Rev. B* **45**, 734 (1992).
- [13] S. Mizuno and S. Tamura: *Phys. Rev. B* **45**, 13423 (1992).
- [14] S. Tamura: *Proc. 3rd Int. Conf. Phonon Physics and 6th Int. Conf. Phonon Scattering in Condensed Matter, Heidelberg, 1989* (World Scientific, Singapore, 1990) p.703.

- [15] S. Tamura, D. C. Hurley and J. P. Wolfe: Phys. Rev. B **38**, 1427 (1988).
- [16] 図 10(a) の透過率は、(100)AlAs/GaAs 超格子を伝わる縦波フォノンに対して計算されたものである。超格子の単位周期は $(\text{AlAs})_{15}(\text{GaAs})_{15}$ からなり、周期数は $N = 15$ であると仮定して計算してある。この計算で用いた、その他のパラメータは次の通りである：(100) 方向の単位原子層の厚さは GaAs と AlAs の両方に対して $2.83 \text{ \AA}$ ；密度と音速は GaAs の場合それぞれ 5.36 g/cm^3 , 4.71 km/s 、AlAs の場合それぞれ 3.76 g/cm^3 , 5.65 km/s 。図 10(b) は、(a) で用いた超格子を 2 つ用意し、その間に超格子と同じ厚さをもつバルク層を挟んだ系に対して計算されたフォノン透過率である。
- [17] E. N. Economou: *Green's Functions in Quantum Physics* (Springer-Verlag, Berlin, 1983).
- [18] G. F. Koster and J. C. Slater: Phys. Rev. **95**, 1167 (1954); **96**, 1208 (1954)
- [19] E. P. Wigner: Phys. Rev. **98**, 145 (1955).
- [20] E. H. Hauge and J. A. Støvneng: Rev. Mod. Phys. **61**, 917 (1989).
- [21] R. Landauer and Th. Martin, Rev. Mod. Phys. **66**, 217 (1994).
- [22] S. Mizuno and S. Tamura: Phys. Rev. B **53**, 4549 (1996)
- [23] S. Mizuno and S. Tamura: Physica B **263** & **264**, 533 (1999); 水野誠司: 表面科学 **20**, 272 (1999).
- [24] S. Mizuno and S. Tamura: Phys. Rev. B **50**, 7708 (1994).
- [25] S. Mizuno and S. Tamura: Physica B **219** & **220**, 693 (1996).
- [26] A. M. Steinberg, P. G. Kwiat and R. Y. Chiao: Phys. Rev. Lett. **71**, 708 (1993); また、「別冊日経サイエンス 112: 量子力学のパラドックス」の中に同じ著者らによる「光より速く伝わる現象」と題した解説 (日本語訳) がある。
- [27] S. Mizuno, M. Ito and S. Tamura: Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 2880 (1994).
- [28] 田村信一郎: 日本物理学会誌 **48**, 324 (1993); 固体物理 **23**, 365 (1988)
- [29] J. P. Wolfe: *Imaging Phonons: Acoustic Wave Propagation in Solids* (Cambridge University Press, Cambridge, 1998).
- [30] G. A. Northrop and J. P. Wolfe: Phys. Rev. B **22**, 6196 (1980).