

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26390100

研究課題名(和文) - 族半導体から構成されるワイヤー型フォノン結晶の振動モードと対称性

研究課題名(英文) Vibrational modes and symmetry of wire-type phononic crystals composed of III-V semiconductors

研究代表者

水野 誠司 (Mizuno, Seiji)

北海道大学・工学研究院・講師

研究者番号：90222322

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)： - 族半導体から構成されるワイヤー型フォノン結晶のフォノン分散関係および変位場を計算するアルゴリズムの開発を行った。このアルゴリズムを用いると構成物質の対称性とワイヤー断面の対称性を考慮してモードごとに計算することができる。この手法を用いて、ウルツ鉱構造の結晶から構成されるGaN/AlNナノワイヤー超格子の分散関係を計算し、振動モードの特徴を明らかにした。計算結果に基づき、最近行われた実験結果の再解釈をおこなった。また、中空構造を有するナノワイヤーの分散関係も計算し、中空構造が振動モードに与える影響を明らかにした。

研究成果の概要(英文)： We developed the algorithm to calculate phonon dispersion relations and displacement fields of the wire-type phononic crystals composed of III-V semiconductors. By using this algorithm, phonon dispersion relations corresponding to each mode can be separately calculated, depending on the symmetry of the cross-section and constituent materials. We theoretically examined the coherent guided acoustic phonons generated and observed in a GaN/AlN nanowire superlattice with the use of ultrafast pump-probe spectroscopy. The propagation processes of the observed acoustic phonons are reexamined based on our numerical results. In addition, we studied the dispersion relations for hollow GaN nanowires, and discussed the effect of the hollow structure on the eigenfrequencies of each mode.

研究分野：工学

キーワード：フォノン結晶 ナノワイヤー フォノン

1. 研究開始当初の背景

(1) フォノン結晶とは、バルクな結晶基板に周期的に穴を開けたり、異なる物質を埋め込むことによって人工的に作成された周期構造のことをいう。周期構造の導入によって生じるフォニックバンドギャップおよびそれを利用してフォノンの伝播を人工的に制御しようという狙いから、そのように呼ばれている。そして、その新たな候補の1つがナノワイヤー超格子である。

ナノワイヤー超格子は、単一ナノワイヤー内に異なる半導体を混在させることにより、北欧のグループにより合成された (Gudikson, 2002)、これは、電子回路をこれまで以上に小型化することへの新たな道を開くものでもあった。実際に、ナノワイヤー超格子を用いた単電子トランジスタや共鳴トンネルダイオードなどが作成されて以来 (Thelander et al., 2003)、電子物性や光物性などの基礎研究から応用研究まで幅広い研究が行われ、ナノテクノロジーへの広範な応用が期待されている。

(2) フォノン(格子振動)に関する研究は、電子物性や光物性の研究に比べて遅れていた。2006年に、日本国内でナノワイヤー超格子に対するラマン散乱の実験が行われたが (Sekine et al., 2006)、この系に生じる光学フォノンに関する理論的な研究が皆無であることから、その理解は進んでいなかった。また、音響フォノンに関しては、水野によって、ねじれ振動モードのフォノン分散関係が解析的に導出され、半径方向のフォノン閉じ込め効果と軸方向の超格子構造による変調効果がフォノンに及ぼす効果が明らかにされた (Mizuno, 2005)。ただし、他の振動モードに対しては、数学的な困難が伴い、解析解の導出は現実的には不可能であった。

(3) 我々は、立方晶の物質からなり、円または矩形の断面形状を持つナノワイヤー超格子の分散関係を計算するプログラムを開発した。そして、数値例として、閃亜鉛構造をもつ GaAs と AlAs からなるワイヤー型フォニック結晶を取り上げ、計算を行った (Mizuno and Nishiguchi, 2009)。加えて、デバイスとしての特性が調べられている InAs/InP ナノワイヤー超格子に対しても計算を行った (Mizuno, 2010)。断面形状は、結晶自体の対称性を反映させた正方形に選んで計算を行ったが、これは理論的な取り扱いが簡単になるためである。また、円形断面の場合にも計算を行ったが、構成物質には等方近似を用いていた (Mizuno, 2011)。

(4) このような状況のなかで、最近、ナノワイヤー超格子をフォニックデバイスとして利用しようという狙いから、フェムト秒ポンププローブ法を用いて、GaN/AlN ナノワイヤー超格子におけるギガヘルツスケールの音響波の発生と伝播の観測が行われた (Mante, et al, 2013)。この先駆的な実験の結果に対して、簡単なモデルに基づいた解釈が行われたが、このモデルではワイヤーの半径方

向のフォノンの閉じ込め効果が取り入れられていなかったため、より現実的な計算が望まれていた。

(5) 近年作成されている III 族窒化物ナノワイヤーの多くはウルツ鉱構造で、円形断面に加えて六角形の断面形状をとるものが多い。以前に我々は、円形断面で閃亜鉛構造の GaN/AlN ナノワイヤー超格子に対して計算を行っている。この計算で、構成物質の構造異方性の効果を明らかにするため、等方性近似を適用してみたところ、ギャップが消失した。このことは、結晶の異方性を十分考慮する必要のあることを示していた。

また、実験的なフォノンの励起方法に依存して、実際には励起されないフォノンのモードが多数存在しており、それらを正確に分類しておくことが望ましい。

2. 研究の目的

(1) 本研究の目的は、ウルツ鉱構造の III-V 族半導体から構成されるワイヤー型フォニック結晶 (ナノワイヤー超格子) のフォノン分散関係 (格子振動状態) をモードごとに効率よく計算するアルゴリズムを開発、改良し、それを適用して、GaN/AlN ナノワイヤーの基礎的なフォノン物性 (格子振動特性) 明らかにすることである。

(2) また、最近行われた、GaN/AlN ナノワイヤー超格子におけるギガヘルツスケールの音響波の発生と伝播の観測の実験結果を我々の計算結果に基づいて解釈を行い、実験グループが行った説明を再検討し、そこで用いられたモデルの妥当性および適用限界を明らかにする。

(3) さらに、最近興味を持たれている、複雑な内部構造を有するナノワイヤーにも注目し、特に、中空構造を持ったナノワイヤー超格子の振動モードを解析するための高精度の計算プログラムを開発する。

3. 研究の方法

(1) 研究に用いる計算プログラムは、我々が、これまでに開発したものに改良を加えて用いる。振動モードは、フォニック結晶を構成する物質自身の対称性と、合成された系の形状に依存する。我々の計算プログラムを、立方晶または六方晶からなる円形または六角形断面をもつナノワイヤー超格子に適用できるように発展させ、それを用いて計算を行う。

(2) 数値計算の準備段階として、ワイヤー断面の形状と振動モードの関係を、群論を用いて整理する。考察する系の対称性に応じて、振動モードの分類を行い、正しい対称性を持った変位ベクトルとしてどのような関数が適当であるかを調べる。

(3) 振動モードを解析し、分散関係を得るために、xyzアルゴリズムと呼ばれる変分法に基づく数値計算法を用いる。その際、正しい対称性を持った変位ベクトルを基底関数

として用い、モードごとに計算を行う。
 (4) 変分法の精度は、一般に基底関数の選び方に依存する。完全系を張る基底関数をすべて用いれば、原理的には、同一の結果が得られるはずであるが、それには無限個の基底関数が必要となる。実際には、有限個で打ち切る必要があるため、計算精度を上げるためには、適切な基底関数の組を選ぶ必要がある。これまで、フォノン変位の各成分を軸方向にはプロッホ関数、面内ではべき関数を組み合わせて構成していたが、べき関数の代わりに2重ルジャンドル関数を用いた新たなアルゴリズムを開発し、その有用性を確かめる。

4. 研究成果

(1) 近年作成されている III 族窒化物ナノワイヤーの多くはウルツ鉱構造で、六角形の断面形状をとるものが多い。そこで、ウルツ鉱構造の結晶から構成される、六角形の断面をもつナノワイヤーおよびナノワイヤー超格子に対して、空間群の理論に基づいて許される振動モードを調べ、正しい対称性を持った変位ベクトルとして許される関数を数学的に整理した。

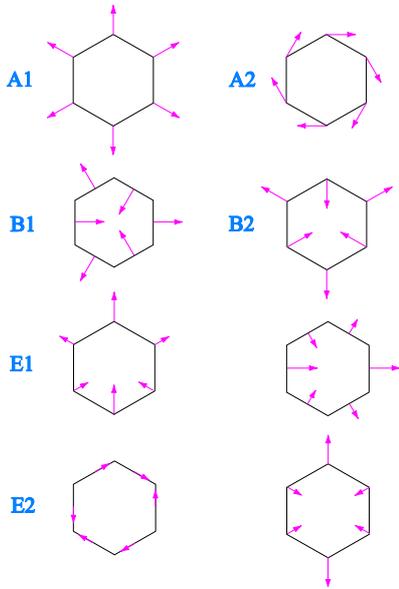


Fig. 1 Symmetry-adopted basis functions belonging to the irreducible representations of C_{6v} .

軸方向の周期性のため、その方向のプロッホ波数が定義される。第一ブリルアン域内 $0 < |k| < \pi/D$ の波数に対する k 群は、 C_{6v} であり、既約表現は、 A_1 、 A_2 、 B_1 、 B_2 、 E_1 と E_2 の6つである。それらの射影演算子を使って、この群の既約表現に属する基礎関数を構成した。基礎関数の対称性を、Fig. 1 に模式的に示す。図では、高い対称性を持つ点におけるフォノン変位が矢印で示されている。 A_1 、 A_2 と E_1 モードは、それぞれ、膨張、ねじれ、曲げモードに対応しているのがわかる。 E_1 、 E_2 モードは2次元表現で、一般に複雑である。

(2) 第一段階として、GaN のプレーンナノワイヤーに対して、分散関係の計算と、変位場の計算を行った。Fig. 2 にモードごとに計算した分散曲線を示す。

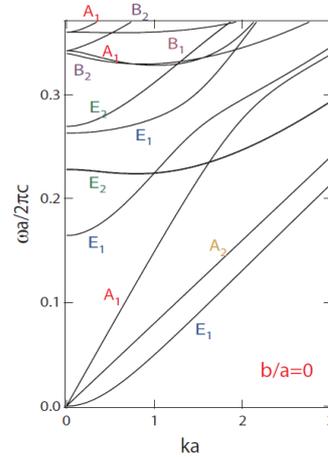


Fig. 2 Phonon dispersion relations of the solid GaN nanowire with a hexagonal cross-section.

プレーンワイヤーには、特徴的な長さが存在しない。したがって、図は、無次元周波数を無次元波数の関数としてプロットしてある。Fig. 2 においてサブバンド構造がみられるのは、ワイヤー軸に垂直な方向の波数が閉じ込め効果によって、離散化していることによる。

Fig. 3 には $ka = 0.2$ の波数における、下から8つの振動モードに対応するフォノン変位を示す。下から8本の分散曲線は、それぞれ、 E_1 、 A_2 、 A_1 、 E_1 と E_2 モードに対応する (Fig. 2)。 E_1 と E_2 モードの分散曲線は、2重に縮退している。また、 B_1 と B_2 モードの分散曲線は、より高い周波数範囲に位置している。高周波数のモードは複雑な変位パターンを持つが、低周波数の場合はわかりやすいパターンを示す (Fig. 3)。

Fig. 3 から、 A_1 モードと A_2 モードが、それぞれ膨張収縮、ねじれ運動を表すモードで、 E_1 モードがたわみを表すモードに対応していることが視覚的によくわかる。 E_1 モードの分散曲線は、 $k=0$ 近傍で、 k^2 に比例している。これは、このモードがベンディングに対応していることを表す。また、 $k \rightarrow 0$ の極限では、ワイヤー軸に垂直な x, y 軸方向の様な並進運動となる。 A_1 と A_2 モードの最も低い周波数のモードは $k=0$ 近傍で k に比例している。 $k \rightarrow 0$ の極限で、 A_1 と A_2 モードは、それぞれ、 z 軸のまわりの様な回転および z 方向の様な並進に対応している。これらの様な運動は、無限小のエネルギーで励起可能である。

一方、 B_1 、 B_2 と E_2 モードの最低固有振動数は、 $k=0$ で有限の値を持つ。これは対応する変位ベクトルの方向が各々の軸のまわりで変化するという事実による、すなわち、変位成分のいくつかはノードを持つ。これらの振動モードを励起するためには、有限の大き

さのエネルギーが必要となるからである。

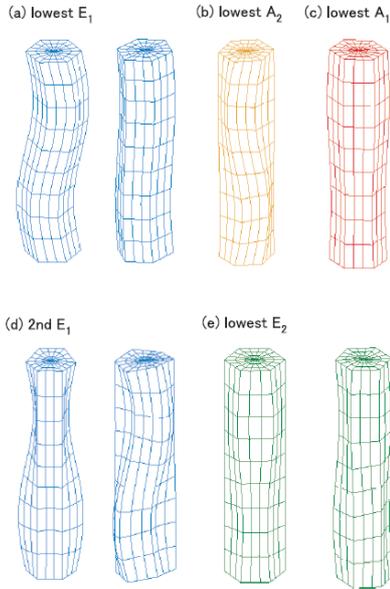


Fig. 3 Displacement field patterns corresponding to the eight lowest modes at $ka = 0.2$ in a solid GaN nanowire with a hexagonal cross-section.

(3) 次に中空構造を有するナノワイヤーに対して分散関係を計算した。Fig. 4 は、ワイヤーの内径 a と外径 b の比が $b/a=1/3$ の場合の計算結果である。中空構造があると、剛性率が小さくなるので、ほとんどの分散曲線は低周波数領域にシフトする。これらのシフトは、振動モードの種類で大きく異なるように見える。

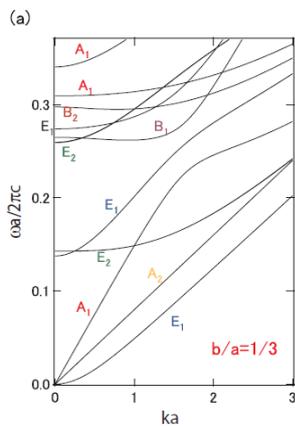


Fig. 4 Phonon dispersion relations of hollow GaN nanowires with a hexagonal cross-section: $b/a = 1/3$;

特に、 E_2 モードの分散曲線は、大きくシフトしている。この効果を示すために、 $ka = 0.5$ に対する振動モードの固有振動数を b/a の関数として Fig. 5 に示す。 B_1 と B_2 モードの固有振動数が E_2 モードに加えて大きくシフトしていることがわかる。

最も低い A_1 、 A_2 と E_1 モードは、小さい k

においてほとんど一定の固有振動数を持つ。これらのモードは、全体としての並進または回転に対応している。中空構造の存在は、このような運動には影響を及ぼさない。一方、 B_1 、 B_2 と E_2 モードは、もともと変位ベクトルの方向がナノワイヤーの中心近くで一様でないので、中空構造の存在が大きな影響を与えることになる。

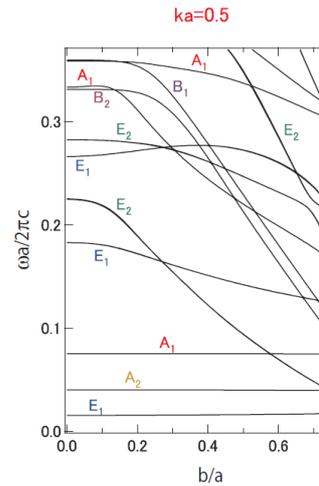


Fig. 5 Eigenfrequencies of the phonon modes at $ka = 0.5$ versus b/a in GaN nanowires with a hexagonal cross-section.

より高い周波数の高次の振動モードでは、変位ベクトルの方向がナノワイヤーの中心領域で、複雑に変化しており、固有振動数の b 依存性は、それほど単純でない。

(4) 最近、Mante らが、フェムト秒ポンププローブ法を用いて、GaN/AlN ナノワイヤー超格子におけるギガヘルツスケールの音響波の発生と伝播の観測を行った。実験で用いられた構造は、半径 75 nm の円形断面を持ち、GaN 層と AlN 層の厚さはそれぞれ、56 nm と 42 nm であった。そこで、この構造に対して、本研究で開発したプログラムを用いた数値計算を実行し、観測された過渡反射率のスペクトルの解釈を行った。

ウルツ鉱の結晶からなる GaN/AlN ナノワイヤー超格子の点群は、 C_{6v} である。しかし、我々の計算アルゴリズムにおいては、 C_{6v} の部分群である C_{2v} の対称性に基づいて基底関数を構成すると計算プログラムが大幅に簡略化される。この場合、モードは A_1 、 A_2 、 B_1 と B_2 モードに分類される。その時、基底関数の個数は 4 分の 1 に削減され、計算する行列要素の数は 16 分の 1 になる。4 つに分類されたモードそれぞれに対して、一般固有値方程式を解き、求められた固有ベクトルの対称性を調べることにより、本来の対称性である C_{6v} のモードに分類することができる。

Fig. 6 は、 C_{2v} における A_1 モードに対する結果である。これらは、 C_{6v} の対称性において A_1 モード (赤) と E_2 モード (青) に分類される。Fig. 6 の右図はそれぞれの変位パター

ンである。左が A_1 モード、右が E_2 モードである。

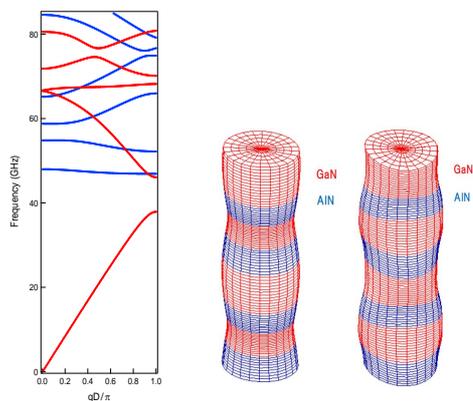


Fig. 6 Dispersion relations of dilatational phonon modes of circular-cross-section GaN/AlN nanowire superlattice: A_1 modes in C_{2v} .

Fig. 7 は、 C_{2v} における A_2 モードに対する結果である。これらは、 C_{6v} の対称性において A_2 モード（赤）と E_2 モード（青）に分類される。Fig. 7 の右図はそれぞれの変位パターンである。左が A_2 モード、右が E_2 モードである。

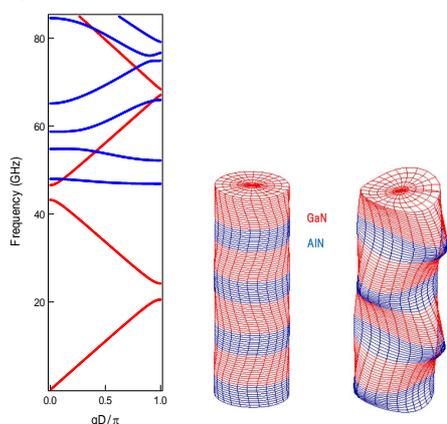


Fig. 7 Dispersion relations of dilatational phonon modes of circular-cross-section GaN/AlN nanowire superlattice: A_2 modes in C_{2v} .

同様に、Fig. 8 は C_{2v} における B_1 モードと B_2 モードに対する結果であるが、両者は完全に重なっている。これらは、 C_{6v} の対称性において E_1 モード（赤）と B_1 モード（青）に分類される。Fig. 8 の右図はそれぞれの変位パターンである。

Mante ら研究において、実験的に励起検出されたモードは、膨張収縮モード、すなわち、 C_{6v} における A_1 モードであると考えられている。実験結果は、彼ら自身のモデルを用いて計算された結果と比較された。このモデルでは、ナノワイヤー超格子の分散関係が、Rytov の方程式（よく知られた Kronig-Penny 方程式に等しい）を通して GaN と AlN との分散曲線を結合することによって求めている。

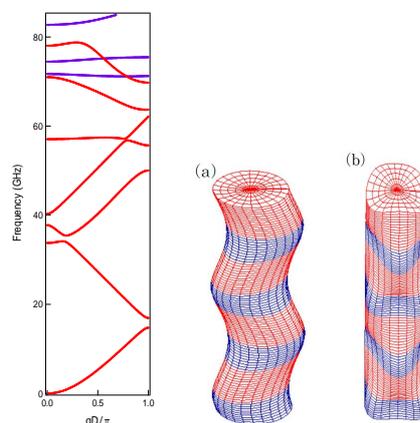


Fig. 8 Dispersion relations of dilatational phonon modes of circular-cross-section GaN/AlN nanowire superlattice: B_1 and B_2 modes in C_{2v} .

Rytov の方程式は、もともとは、平面超格子界面に垂直に伝播する縦波に対して導出されたものである。界面は無限の広がりを持つものと仮定されており、変位場は単一モードの平面波として扱われている。しかし、縦波それ自身は、ワイヤー表面で起こる縦波と横波の結合のために、ワイヤー構造の中で単独で存在することができないことはよく知られている。これらのことは、波が単一平面波として表されることができないことを意味しており、また、フォノンモードはワイヤーの断面積の形状に依存することを意味している。したがって、我々はフォノンの横方向の閉じ込め効果を正確に扱う必要がある。

我々は、Rytov の方程式を用いた近似計算も行い、上の数値計算と比較することで、その妥当性を吟味した。その結果、一番下のバンドと2番目のバンドの中ほどまでは、Rytov の方程式でよく再現できることが分かった。例えば一番下のバンドでは、フォノン変位がノードを持たないので、ワイヤーの半径方向の閉じ込め効果が効かないからである。しかしながら、それより上の周波数になると大きなずれが生じ、さらには、この方程式では表されない別のモードが現れるので、このモデルは適用できなくなることがわかった。

また、我々は、計算した分散曲線から群速度を計算し、実験で観測されたフォノンの伝播経路の検討を行った。ナノワイヤー超格子の端で励起されたフォノンが、超格子とプレーンワイヤーの界面、および超格子と基板の界面まで伝播し反射されて戻ってくる経路をとったと解釈できることを示した。これは、Mante らの解釈とは異なっているが、現実的で自然な解釈であると考えられる。

(5) 中空構造をもつナノワイヤー超格子などの複雑な構造における計算精度を上げるため、基底関数として2重ルジャンドル関数を用いたアルゴリズムを開発し、計算プログラムを完成させた。2重ルジャンドル関数を用いたことにより、狭い領域での変位場の変動を効率よく表せるようになったことに加

え、対称性によるモードの分類も簡単に行うことができる。この手法を用いることで、中空構造を有するナノワイヤー超格子で見られた高周波領域のギャップ幅の過小評価が改善された。この先、複雑な内部構造を有するナノワイヤーの振動モードの解析に役に立つものと期待している。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 11 件)

(学術論文)

Yuki Iwai and Seiji Mizuno: “Coherent guided acoustic phonons in GaN/AlN nanowire superlattices”, Jpn. J. Appl. Phys.57 (2018) 07LB02. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.57.07LB02

Y. Tanaka, Y. Shimomura, and N. Nishiguchi: “Acoustic wave rectification in viscoelastic materials” Jpn. J. Appl. Phys. 57 (2018) 34101. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.57.034101

Y. Tanaka, S. Tomioka, and N. Nishiguchi: “Propagation of elastic waves in two-dimensional phononic crystal composed of viscoelastic materials” Jpn. J. Appl. Phys. 56 (2017) 34101. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.56.034101

Seiji Mizuno: “Phononic bandgaps peculiar to solid-fluid superlattices”, Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 17302. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.55.017302

Y. Tanaka and N. Nishiguchi: “Effects of elastic anisotropy on acoustic-wave rectification” Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 014303. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.55.014303

Y. Tanaka, D Kono, and N. Nishiguchi: “Rectification of elastic waves in beams with rectangular cross section” Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 104301. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.55.104301

Y. Tanaka, N. Okashiwa, and N. Nishiguchi: “Interface acoustic waves at the interface between two semi-infinite phononic crystals” Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 104302. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.55.104302

Seiji Mizuno: “Vibrational modes and symmetry in a hexagonal-cross-section nanowire”, Jpn. J. Appl. Phys. 53 (2014) 07KB02. 査読有

DOI :10.7567/JJAP.53.07KB02

[学会発表](計 10 件)

Seiji Mizuno: “Acoustic phonon modes in nanowire superlattices”, International Symposium for Advanced Materials Research, Sun Moon Lake, Taiwan (2017).招待講演
Y. Iwai and S. Mizuno: “Coherent Guided Acoustic Phonons in GaN/AlN Nanowire Superlattices”, Symposium on Ultrasonic

Electronics, Tagajo, Miyagi ,2017.

Seiji Mizuno: “Variational method with Legendre-basis-functions: calculation of acoustic phonon modes in nanowires”, Symposium on Ultrasonic Electronics, Tagajo, Miyagi ,2017.

Seiji Mizuno: “Acoustic phonon modes and dispersion relations of nanowire superlattices”, EMN Croatia meeting, Dubrovnik, Croatia, 4-7 May, 2016. 招待講演

S. Mizuno: “Acoustic phonon modes in hexagonal-cross-section nanowires with a wurtzite structure”, The 15th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Phonon 2015, Nottingham, UK, 12-17 July 2015.

S. Mizuno: “Frequency gaps not originating from Bragg reflection in a solid-liquid phononic crystals”, The 15th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Phonon 2015, Nottingham, UK, 12-17 July 2015.

T. Taira, A. Suzuki, N. Nishiguchi: “Electron-phonon interaction in a dynamically curved graphene”, The 15th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Phonon 2015, Nottingham, UK, 12-17 July 2015.

Seiji Mizuno: “phononic bandgaps peculiar to solid-liquid superlattices”, EMN(Energy, Materials and Nanotechnology) meeting, Phuket, Thailand, 4-7 May 2015. 招待講演

S. Mizuno: “Flat Bands in One-dimensional Solid-Fluid Phononic Crystals”, Symposium on Ultrasonic Electronics, Tokyo , 2014.

[図書](計 1 件)

Seiji Mizuno: “Resonant interaction of acoustic phonons with localized vibrational modes in superlattices”, Horizons in World Physics 291, ISBN978-1-53611-008-1, Nova Science Publishers, Inc., (2017) 37-116 .

6 . 研究組織

(1)研究代表者

水野 誠司 (MIZUNO SEIJI)

北海道大学・大学院工学研究院・講師
研究者番号：90222322

(2)研究分担者

西口 規彦 (NISHIGUCHI NORIHIKO)
北海道大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号：40175518

田中 之博 (TANAKA YUKIHIRO)
北海道大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：00281791