磁場下における半導体からの高強度テラヘルツ電磁波発生と応用

大竹 秀幸, 猿倉 信彦

分子科学研究所 (〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町西郷中38)

Intense THz Radiation from Semiconductors in a Magnetic Field and Its Application

Hideyuki OHTAKE and Nobuhiko SARUKURA

Institute for Molecular Science, 38 Nishigonaka, Myodaiji, Okazaki, Aichi 444-8585

(Received February 4, 2002)

We have generated enhanced THz-radiation from a femtosecond laser irradiating semiconductor in a magnetic field with a shallow incidence angle. The average power of THz-radiation has reached approximately 100 μ W. Using intense THz radiation, a simple, noncontact, simultaneous method is applied to measure thickness and water content of black ink films independently from frequency-dependent and frequency-independent absorption characteristics of black ink films.

Key Words: THz-radiation, Magnetic field, Semiconductor, Black ink films

1. はじめに

現在, テラヘルツ領域の応用研究は急速な進歩を遂げている. この波長領域は電波と光の端境領域であり, 今まで適切な, 例えばレーザーのような, 光源や検出器が少なかったため, その進歩は他の分野に比べて緩やかであった. しかし, 近年になってフェムト秒レーザーが急激に普及し, 比較的簡単な手法を用いることにより容易にテラヘルツ電磁波が発生できるようになったため, 様々な応用研究に用いられるようになってきている.

テラヘルツ電磁波を用いた応用研究を行う上で重要な要素技術の一つはテラヘルツ電磁波の高強度化であった. 従来から用いられていた光伝導アンテナ¹⁾から放射されるテラヘルツ電磁波の強度は最大でも数十マイクロワットであり, 分光学的には応用可能であっても工業応用には十分とはいえなかった. 工業応用を念頭に置いた場合, 耐用性があり, 発生及び検出が容易であることが求められる. 光伝導アンテナは過電流によりブレイクダウンが起りやすく, 耐用性の面で問題となる. 検出に関しては前出の光伝導アンテナ¹⁾と並んでEOサンプリング法²⁾が挙げられるが, 両者とも高感度ではあるものの, 複雑な時間遅延機構を必要としているため実機配備の実状に適していない. 従って, 時間遅延機構が必要なく, 高感度検出が可能な液体ヘリウム冷却型のボロメーターのような検出器が初期応用研究には最適である. しかしながら, 実際の工業応用に際しては液体ヘリウムの利用は難しく, 常温で使用できる焦電素子等で検出可能な高

強度テラヘルツ電磁波が求められていた.

そこで我々は市販の片面研磨された半導体に磁場を印加し, フェムト秒レーザーを照射する簡便な手法により, 高強度テラヘルツ電磁波を発生する光源を開発した³⁻⁵⁾. このシステムで特筆すべき点はテラヘルツ電磁波光源として用いた半導体が, 片面だけ鏡面研磨されているのみで, その他は何も特殊な加工は施されていない点である. 前出の光伝導スイッチはアンテナ構造や超格子構造などの複雑な加工技術を必要とするが, このテラヘルツ光源は市販の半導体を用いているので, 安定性, コスト, 扱い易さの点で群を抜いている. 本稿では磁場を印加したInAsからの高強度テラヘルツ電磁波発生とその応用研究に関して述べる.

2. 磁場下におけるInAsからの高強度 テラヘルツ電磁波発生

2.1 GaAsとの比較

Fig. 1にGaAsとInAsを試料に用いたテラヘルツ電磁波の励起強度依存性の実験結果を示す. 実験配置は試料面に対して励起光が45度で入射し, テラヘルツ電磁波が入射光の反射方向に出射する配置で行った. この実験では, 試料は1.7 Tの磁場中に置かれている. 励起光源はパルス幅100フェムト秒のモード同期チタンサファイヤレーザーで, 約1 mm程度のスポット径で試料に照射されている. どちらの半導体もドーピングされていないが, InAsはその性質上若干n型となっている. これらの半導体は市販されてい

Fig. 1 Excitation power dependence of THz-radiation power for InAs (solid squares) and GaAs (open circles) at magnetic field 1.7 T. The solid line shows slope 2.

る片面研磨のもので、特殊な加工は何一つ施されていない。Fig. 1から明らかなように、InAsからのテラヘルツ電磁波強度はGaAsよりも一桁強くなっている³⁾。両者のテラヘルツ電磁波強度の違いは伝導帯の有効質量の違いを反映していると考えられる。Γ点近傍でのGaAsの電子の有効質量はInAsの有効質量の約3倍の質量をもつ。電磁気学的に考察すると、外場によって駆動される電子が発生する双極子放射の電場強度 E は電子の加速度、つまり質量の逆数に比例すると考えられるので、InAsから放射されるテラヘルツ電磁波強度はGaAsからのもののおよそ3²倍の強度をもつことになる。同様な実験配置 (Fig. 2) で試料面に対して平行に磁場を印加した結果、前と同様にInAsからのテラヘルツ電磁波はGaAsのものに比べて一桁大きい強度を示した。これは前に述べた有効質量の概念を応用して説明することができる。磁場中では、光誘起キャリアは瞬時電流として流れる際にローレンツ力を受け、電流は磁場に巻き付く方向に変調を与えられる。テラヘルツ電磁波の放射強度は加速度の2乗に比例するが、ローレンツ力を受けての加速の場合、加速度は磁場強度に比例することになる^{4,6)}。すなわち、テラヘルツ電磁波の放射強度は磁場強度の2乗に比例して強くなることになる。この場合も、有効質量の軽いInAsの方が偏向され易いためGaAsに比べてInAsの方がより高強度のテラヘルツ電磁波を発生させることが可能となるのである。

2.2 InAsからの高強度テラヘルツ電磁波発生

ここであげる実験では、試料のInAsは最大磁場5.0 Tまで印加可能な超伝導磁石のつくる磁場内に置かれている。実験配置図をFig. 2に示す。試料から放射されたテラヘルツ電磁波は軸外し放物面鏡で平行光線化され、偏光子 (ワイヤグリッド偏光子) を通り、偏光フーリエ干渉計で分光された後、液体ヘリウム冷却型Siボロメーターでロックイン検波される。(Fig. 2の(a)光路) また、その強度を測定する場合は分光器を通さずボロメーターに直接テラヘルツ電磁波を導き、その強度をロックイン検波する。(Fig. 2の(b)光路)

Fig. 2に示した配置で測定したInAsのテラヘルツ電磁波強度の磁場強度依存性をFig. 3に示す。図中に示した、■

Fig. 2 Experimental setup. Path (a) and (b) are for FTIR and measurement of total radiation power.

はテラヘルツ電磁波の放射量の全量を、◇は垂直偏光を、○は水平偏光をそれぞれ示している。(Fig. 2において紙面垂直な電場ベクトルをもつ偏光を垂直偏光、紙面内での電場ベクトルをもつ偏光を水平偏光と定義した。) Fig. 3から明らかなように、この実験配置では主として水平偏光の成分が発生していることがわかる。これは表面に垂直な双極子が放射を起こした場合、外部に放射される電磁波が水平偏光をもつという特徴をよく表している。偏光を特定しない全量検出の場合、この実験配置ではほとんど水平偏光と違いがないが、テラヘルツ電磁波強度はおよそ0.5 Tから2.0 T付近までの磁場強度において、磁場強度の2乗に比例する性質を示す。しかし、テラヘルツ電磁波強度は3.0 T近傍で飽和し、3.0 T以上では激減する。GaAsからのテラヘルツ電磁波強度が磁場強度の2乗に比例することはZhang等により報告されていたが³⁶⁾、0.2 Tまでの弱磁場での報告に留まっており、InAsからのテラヘルツ電磁波強度が磁場強度の2乗に比例してどこまで強くなるのかということはわかっていなかった。この実験により、Fig. 3に述べた実験配置では3.0 T近傍が高強度テラヘルツ電磁波を得る上でもっとも効率的であるということが判明した⁴⁾。

Fig. 4に実測されたテラヘルツ電磁波のスペクトルを示す。およそ0.3 THzに中心を持つ非常に幅広いスペクトルが得られている。スペクトル全域に渡って出現している鋭い吸収線は、空気中の水蒸気吸収であり、これは試料と光路が大気中に置かれているためである。磁場誘起によるテラヘルツ電磁波のもう一つの特徴は、磁場の印加強度によりスペクトル形状を制御できる点にある⁷⁾。Fig. 5に示した鳥瞰図はスペクトルの磁場依存性を示している。便宜上、最大強度のピークを1に規格化してある。Fig. 5から明らかなように、磁場の印加方向によらず、磁

Fig. 3 Magnetic field dependence of THz radiation power.

Fig. 4 Spectrum of THz radiation in magnetic field 3.5 T and 0 T.

場強度が増すにつれてスペクトルの中心が大きく変化していることがわかる。

次に励起レーザー光の入射角度依存性に関して述べる。Fig. 6に実験配置図を示した。実験は1.7 Tの磁場中で行った。Fig. 6に示したように励起レーザー光の入射角が θ だけ回転した際、検出器は 2θ 回転し、入射角 θ でのテラヘルツ電磁波強度を検出できる機構になっている。検出結果がFig. 7である。Fig. 7 (a)は検出器にボロメーターの代わりにレーザー用のパワーメーターを用いて励起レーザー光の反射光強度を測定したものである。●が水平偏光、■が垂直偏光を示している。図から明らかなように、水平偏光において、入射角約80度のとき反射が最小となる(ブリュースター角)。Fig. 7 (b)は検出器にボロメー

Fig. 5 3-D plot for THz-radiation spectra on different magnetic fields up to 5.0 T.

Fig. 6 Experimental setup for angular dependence of THz-radiation power.

ターを用いてテラヘルツ電磁波強度を測定した結果である。垂直偏光は70度程度までテラヘルツ電磁波の強度に大きな変化はなく、それ以上の角度では減衰していく。一方、水平偏光は入射角40度くらいから大きく増加し、ブリュースター角近傍で最大値をとり、その後急激に減少していく。ブリュースター角近傍では吸収が最大になるため、過渡電流生成のための光励起キャリア数が増大し、テラヘルツ電磁波強度が増大するものと考えられる。ブリュースター角近傍における最大のテラヘルツ電磁波強度は入射角0度のときの5倍、45度のときの4倍に達し、大きな入射角で励起を行うことにより効果があることを示している⁵⁾。Fig. 8に様々な入射角でのテラヘルツ電磁波スペクトルを示す。入射角0度においては対称性からどちらの磁場でも同じスペクトルになっている。一方、角度が45度、78度と大きくなるにつれて、スペクトルの非対称性は増大していく。最大強度が得られるブリュースター角近傍では紙面下向きの磁場配置で低周波成分が増大していることがわかる。

2.3 高強度テラヘルツ電磁波発生 of 諸条件

高強度テラヘルツ電磁波を発生させるための条件をま

Fig. 7 Angular dependence of (a) 800-nm excitation laser reflectivity and (b) THz-radiation intensity from InAs. The solid and dotted lines indicate theoretical calculations for $n = 3.729$, $k = 0.448$.

Fig. 8 THz-radiation spectra from 1.7-T magnetic field applied to an InAs emitter with 0, 45, and 78 degrees incidence angles of the excitation laser. The solid and dotted lines indicate each magnetic field direction.

とめるとFig. 9のようになる。

- ①半導体：InAsが最も効率的である^{3-5,7,8)}。
- ②印加磁場：3 T付近の磁場が最も効率的である⁴⁾。
- ③励起強度：より高強度で励起することが望ましい³⁾。
- ④レーザー入射角：ブリュースター角近傍が最適である⁵⁾。
- ⑤表面処理：鏡面研磨が成されていれば実用上十分な性能を得られる⁹⁾。
- ⑥温度：常温で実用上十分な性能を得られる⁹⁾。

上記の条件下で発生させることができるテラヘルツ電磁波強度はおよそ100マイクロワットレベルに達しており、周波数領域も0.5～2 THzの範囲で吸収測定などの応用研究には十分に使用可能な領域に含まれているため、テラヘルツ電磁波は完全に応用可能な段階に入ったといえる¹⁰⁾。さらに、小型テラヘルツ電磁波発生装置の開発にも成功しており、Fig. 10に示したようにテラヘルツ電磁波発生装置の大きさはレーザーのヘッドと2 T永久磁石を含めて、ノートブックコンピュータ程度の大きさにまで小型化されている。このシステムは小型ながら高出力であり、常温素子でテラヘルツ電磁波が測定できるため様々な分野から注目を集めている¹¹⁾。

3. 高強度テラヘルツ電磁波の応用研究

現在までに高強度テラヘルツ電磁波を用いた応用研究はタンパク質や超臨界状態の分光応用など多く成されてきているが、ここでは黒色インクの膜厚と水分含有量の同時測定に関して述べる。従来、黒インク薄膜は可視、近赤外領域においても不透明であるため、可視、近赤外光を用いた膜厚及び水分含有量の非接触測定が困難であり、印刷技術発展のボトルネックとなっていた¹⁴⁾。しかし、我々の最近の研究から、テラヘルツ領域で黒インクが特定の吸収特性を示すことから、膜厚等の非接触測定

Fig. 9 Sophisticated geometrical layout to generate intense THz radiation.

Fig. 10 Photograph of THz-radiation emitter system. Laser beam is focused onto the sample with a 2 T permanent magnet.

が可能となることがわかってきた。そこで透過スペクトルから黒インク薄膜の膜厚と水分含有量を独立に測定するシステムの開発を行った¹⁵⁾。

Fig. 11に実験配置図を示す。70 fsのパルス幅を有するモード同期チタンサファイアレーザー光は常温大気中に置かれたInAsにおよそ70度の角度で照射される。理論的にはブリュースター角近傍で励起レーザーを入射することが望ましいが、調整が難しいため本実験では70度入射とした。InAsには1.7 Tの磁場が印加されている。テラヘルツ電磁波は軸はずし放物面鏡でコリメートされたのち、試料面上におよそ直径1 mmの焦点を結び、透過光は再び軸はずし放物面鏡でコリメートされ、偏光フーリエ干渉分光器を通し、Geボロメーターを用いてロックイン検波される。試料はテラヘルツ領域で透明な石英板に挟まれており、試料調合時の膜厚と水分含有量を保持できる構造になっている。Fig. 12は参照スペクトル(破線)と膜厚12 μm のインク薄膜(水分含有量20%)試料を透過したテラヘルツ電磁波のスペクトルを示している。Fig. 12中の鋭いディップは水蒸気による吸収線である。解析を行うに際し、水蒸気吸収が少なく、スペクトル上でテラヘルツ強度が最大となる0.6～1.05 THzを抽出した。Fig. 13に膜厚と水分含有量を変えて測定した透過スペクトルを示す。スペクトルの干渉縞は膜を挟んでいる石英板によるテラヘルツ電磁波の干渉であり、この干渉縞は石英板をくさび形にすることにより取り除くことが可能である。Fig. 13 (a)は水分含有量を0%に固定し、膜厚を変化させた結果である。膜厚が厚くなるに従って吸収が増していく様子がわかる。また、この吸収には周波数依存性があり、膜厚が厚い試料ほど高周波での吸収が大きくなることがわかる。Fig. 13 (b)は膜厚を12 μm に固定し、水分含有量を0～20%まで変化させたスペクトルである。Fig. 13 (a)と同様、水分含有量が多くなるに従って吸収は増大しているが、こちらには周波数に依存した吸収は観測されていない。つまり、膜厚に関する情報は周波数依存性を持つ吸収に、水分含有量に関する情報は周波数依存性を持たない吸収に反映されることになる。Fig. 12中の実線は最小二乗法を用いてフィッティングを行った結果である。周波数に依存する吸収と依存しない吸収が良く再現されている。これらの結果をまとめたものがFig. 14である。Fig. 14 (a)は周波数依存性を持つ吸収 α_ω 、(b)は周波数依存性を持たない吸収 α_0 をそれぞれ示している。 α_ω 、 α_0 ともに膜

Fig. 11 Experimental setup for simultaneously measuring thickness and water content of thin black ink films. The magnetic field direction is from the back to the surface.

Fig. 12 Typical spectra for reference (dashed curve) and thin black ink film with 12-μm thickness and 20-% water content (solid curve).

Fig. 13 The transmission spectra for various thin black ink films. (a) 12-, 24- and 36-μm thickness, no water content films; (b) 12-μm thickness, 0-, 5-, 10-, 20-% water content films.

厚及び水分含有量が増すにつれて大きくなっている。実験結果はFig. 14 (a), (b)に示した実線で再現される。実線は以下のような式で与えられる。

$$\alpha_{\omega} = 0.0061 \times m,$$

$$\alpha_0 = 0.029 + 0.005 \times x,$$

ここでmは膜厚(μm), xは水分含有量(%)である。従って、測定したスペクトルから α_{ω} と α_0 を算出することにより膜厚mと水分含有量xの同時測定が可能となる。

以上のように、テラヘルツ電磁波を用いて、簡単な、非接触のインク膜厚と水分含有量の同時測定を実現した。この系統の測定は様々な分野において潜在的な要請があると考えられるため、今後の発展が期待される。

4. 将来の展望

今回紹介した磁場印加の手法は非常に簡便であり、他のシステムに比べて圧倒的に安価であるため、新技術実現の強力な道具立てとなる。テラヘルツ領域のイメージ

Fig. 14 Fitting parameters for transmission spectra. (a) Water content dependence of α_{ω} , (b) Thickness dependence of α_0 . The thickness and water content of thin black ink films are determined simultaneously from these results.

ングにおいても高強度テラヘルツ電磁波は必要不可欠であり、医療応用や生体分子計測に用いられている。特に医療応用では、エックス線とは異なり、人体に無害な高透過性コヒーレント光源として世界中で広く研究が成されている。近い将来、簡単な透過画像にはテラヘルツ電磁波を用いることが当然になるような社会が実現するかも知れない。これらの技術は夢のテーマであった人にも物にも優しいエックス線に代わる夢の光を創り出すことに大きな力を発揮するものと考えられる。

参考文献

- 1) D. H. Auston: Appl. Phys. Lett. **45** (1984) 284.
- 2) Q. Wu and X. -C. Zhang: Appl. Phys. Lett. **68** (1996) 1604.
- 3) N. Sarukura, H. Ohtake, S. Izumida, and Z. Liu: J. Appl. Phys. **84** (1998) 654.
- 4) H. Ohtake, S. Ono, M. Sakai, Z. Liu, T. Tsukamoto, and N. Sarukura: Appl. Phys. Lett. **76** (2000) 1398.
- 5) S. Ono, T. Tsukamoto, E. Kawahata, T. Yano, H. Ohtake, and N. Sarukura: Appl. Opt. **40** (2001) 1369.
- 6) X. -C. Zhang, Y. Jin, L. E. Kingsley, and M. Weiner: Appl. Phys. Lett. **62** (1993) 2477.
- 7) S. Izumida, Shingo Ono, Z. Liu, H. Ohtake, and N. Sarukura: Appl. Phys. Lett. **75** (1999) 451.
- 8) C. Weiss, R. Wallenstein, and R. Beigang: Appl. Phys. Lett. **77** (2000) 4160.
- 9) H. Ohtake, S. Ono, Z. Liu, N. Sarukura, M. Ohta, K. Watanabe, and Y. Matsumoto: Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) L1186.
- 10) S. Ono, T. Tsukamoto, M. Sakai, Z. Liu, H. Ohtake, N. Sarukura, S. Nishizawa, A. Nakanishi, and M. Yoshida: Rev. Sci. Instrum. **71** (2000) 554.
- 11) H. Ohtake, Y. Suzuki, N. Sarukura, S. Ono, T. Tsukamoto, A. Nakanishi, S. Nishizawa, M. L. Stock, M. Yoshida, and H. Endert: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) L1223.
- 12) for example, K. Tominaga, H. Ohtake, N. Sarukura, K. Saitow, H. Sasakawa, A. Tamura, I. Rubtsov, and K. Yoshihara: Advances in Multi-Photon Processes and Spectroscopy **14** (2001) 317.
- 13) for example, K. Saitow, H. Ohtake, N. Sarukura, and K. Nishikawa: Chem. Phys. Lett. **341** (2001) 86.
- 14) 長谷川 公平: 電学論C, **108** (1988) 493.
- 15) H. Ohtake, Y. Suzuki, S. Ono, N. Sarukura, T. Hirosumi, and T. Okada: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) L475.