磁場による半導体からのテラヘルツ電磁波放射の増強

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)

Enhanced Terahertz-Radiation from Semiconductors under Magnetic Field

Hideyuki OHTAKE and Nobuhiko SARUKURA

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

(Received April 21, 1998)

We have generated enhanced Terahertz (THz)-radiation from semiconductors under magnetic field. The average power of THz-radiation, peaked at frequency of ~ 0.3 THz, reaches $650 \mu\text{W}$. We have studied the ellipticity of the THz radiation and have found that it depends strongly on magnetic field. In addition, we have demonstrated a new scheme for generating THz-radiation using a saturable Bragg reflector placed inside a mode-locked Ti:sapphire laser cavity. By using this scheme, THz-radiation with $0.8 \mu\text{W}$ has been observed.

Key Words: THz-radiation, Magnetic field, Semiconductor, Ellipticity

1. はじめに

テラヘルツ領域(1THz , $300\mu\text{m}$, $33\text{cm}^{-1} = 4.1\text{meV}$)の物理は、現在最も進歩のはやい分野の一つである。この領域は、いわば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、未発見、未解明の様々な現象が数多く潜んでいると考えられている領域である。しかし、1983年Auston等の光伝導スイッチ¹⁾(半導体基板上につくられた光伝導スイッチ)を用いた超短パルステラヘルツ放射発生を始めに、様々な手法を用いたテラヘルツ放射発生の研究がなされ、実際にテラヘルツ放射を使った実験報告も数を増してきている。

最近行われたテラヘルツ放射を用いた分光の例は、Grischkowsky等による炎の分光²⁾と、Jacobsen等の混合ガス分析³⁾が挙げられる。Grischkowsky等は 1150K で燃焼するプロパンガスの炎の中にテラヘルツ放射を透過させ、その吸収スペクトルから炎中に NH_3 や CH の分子が存在することを明らかにした²⁾。Jacobsen等は混合ガス中にテラヘルツ放射を透過させ、混合ガス中の各々のガスの成分を「線形予測法」⁴⁾というデジタル信号分析技術を用いた高速解析法により測定した。また、少々工業応用的なところではテラヘルツ放射による「透視」実験がある。「透視」の技術はテラヘルツ放射源関連の研究においても、高出力化、高平均出力化と並んで重要視されている分野である。「透視」技術の一例には、米国ベル研究所のNuss等によるテラヘルツ・イメージングの研究が挙げられる⁵⁾。Nuss等は物質を透過したテラヘルツ放射の物質の境界面での反射を解析することによって、物質の内部構造を「透視」することに成功し

た。ここで述べた「透視」技術はエックス線を使わない新たなイメージングの手段となる可能性をもつため、大きな期待が寄せられている。確かに、人体に害を与えるエックス線に取って代わる光源が現れれば、医療に関してだけでなく半導体をはじめとした工業的にも大きな進歩をあたえることになる。しかしながら、このような研究開発を遂行するにあたって最も問題となるのはテラヘルツ放射の強度である。上記のような現行システムでは、テラヘルツ放射強度は数マイクロワットレベルであるため、医療はもちろん、比較的放射強度が弱くても大丈夫な分光学等への応用が初期段階にある程度であり、汎用化しているとはいえない。このような観点から、高強度、高安定、簡便、小型の光源開発が急務であるといえる。

2. 様々なテラヘルツ発生法

テラヘルツ放射発生には、光伝導素子を用いた差周波⁶⁾による発生法、非線形素子を用いたパラメトリック発振器^{7,8)}による発生法、フェムト秒(ピコ秒)レーザーで励起された半導体素子による発生法等がある。

差周波は、超伝導体や半導体からなる非線形素子に振動数がテラヘルツ程度異なったレーザー光を入射することにより、それぞれの周波数の差分が現れることを用いたもので、帯域の狭い安定な二つのCWレーザー光を用いることによりテラヘルツ放射が得られる⁶⁾。

パラメトリック発振器によるテラヘルツ放射発生は、励起波長とシグナル波長を極めて近づけることにより、アイドラー光を遠赤外領域、すなわちテラヘルツ領域にする発

生法である。この手法では、広帯域波長可変性は実現されているが、非線形素子の吸収損失が大きく、アイドラー光の取り出しが難しい欠点があった。しかし、東北大の伊藤等は外部へのテラヘルツ放射の取り出しの方向を工夫することにより、実用的な光源に近づけた⁸⁾。

一方、フェムト秒レーザー励起のテラヘルツ放射発生は、光伝導スイッチ¹⁾、超伝導体⁹⁾、半導体表面^{10,11)}、半導体超格子¹²⁾等様々な方法が用いられている。前述した光伝導スイッチは、現在多くの研究者に用いられるようになってきているが、半導体バルクと比較すると、作製プロセスを必要とすること、微小アンテナタイプのものでは大きな出力が得られないことなどの難点があげられる。したがって、汎用性の観点から見て、常温常圧で変化せず、作製プロセスを必要としない半導体バルクでテラヘルツ放射源を製作することは意義深い。

3. 磁場中におかれた半導体バルクからの テラヘルツ放射

3.1 半導体表面からのテラヘルツ放射

Fig.1に、半導体バルクサンプルをテラヘルツ放射光源に用いた実験系を示す。励起光源は100フェムト秒チタンサファイヤレーザーで、約1mm程度のスポット径でサンプル(InAs, GaAs)に照射されている。サンプルは最大磁場1.7Tまで印加可能な電磁石のつくる磁場内に置かれている。サンプルから放射されたテラヘルツ放射は、アルミミラーで反射された後、ワイヤーグリッド偏光子を通り、軸外し放物面鏡でコリメートされ、偏光フーリエ干渉分光計で分光された後、液体ヘリウム冷却型InSbボロメーターでロックイン検波される(Fig.1 (a)の光路)。あるいは、その強度のみを測定する場合は、分光器を通さずボロメーターでロックイン検波する(Fig.1 (b)の光路)。

ここで特筆すべきは、放射光源として用いた半導体バルクが、表面は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¹⁾はアンテナ構造や超格子構造などの複雑な加工技

Fig.1 Experimental setup. Path (a) and (b) are for FTIR and measurement of total radiation power respectively.

術を必要とするが、このエミッターは市販の半導体バルクを用いているので、低温にする必要性もなく、安定性、コスト、扱い安さの点で群を抜いている。

上記に示したような45度配置で測定したInAsのテラヘルツ放射強度の磁場強度依存性をFig.2に示す。図中に示したように、■はテラヘルツ放射全量を、◇は垂直偏光を、○は水平偏光をそれぞれ示している。ここで、Fig.1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、紙面内の電場ベクトルをもつ偏光を水平偏光と定義した。偏光を特定しない全量検出の場合、テラヘルツ放射強度はおよそ0.5T以上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、偏光子を用いて二つの成分に分解してテラヘルツ放射強度の測定をすると、その磁場強度依存性は劇的な違いが現れる。垂直偏光の成分は弱磁場において磁場強度の2乗に比例するが、強磁場になるにつれて2乗から外れ飽和するようになる。一方、水平偏光成分は弱磁場下ではまったく変化せず、強磁場において磁場強度の2乗に比例する性質を示す。テラヘルツ放射が磁場強度の2乗に比例することは、Zhang等らにより報告されており¹³⁾、光励起キャリアが、主に電子が、ローレンツ力により加速されるためであると考えられている。Zhang等は実際に0.2Tまでのテラヘルツ放射強度が磁場強度の2乗に比例することは測定しているが、どこまで絶対強度が強くなるのかということとはわかっていない。この発生手法により、我々は現在までに650μWのテラヘルツ放射強度を実現しており、ほぼ実用光源としての見通しは開けてきている¹⁴⁾。

Fig.3に実測されたテラヘルツ放射のスペクトルを示す。およそ0.3THz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、これはサンプルが大気中に置かれているためである。磁場誘起テラヘルツ放射のもう一つの特徴は、偏光が大きく印加磁場強度に依存することである。Fig.4に磁場を変化させたときの

Fig.2 Magnetic field dependence of THz radiation power.

Fig.3 Spectrum of THz radiation under 1.7-T magnetic field.

Fig.4 Magnetic field dependence of ellipticity. (a) GaAs, (b) InAs.

偏光の変化を示した。縦軸は直線偏光度を表す。磁場が印加されていない場合、GaAs(Fig.4 (a)), InAs(Fig.4 (b))ともに直線偏光のテラヘルツ放射を発生するのだが、磁場が増すにつれて次第に円偏光に近づき、再び直線偏光的になる傾向を示す。この偏光の変化はテラヘルツ放射を起こす双極子が磁場によって回転するためであると考えられる。この測定により、我々はInAsを用いて、磁場印加によるテラヘルツ電磁波発生法が十分実用的であることを実証した。

3.2 キャビティ内に置かれた過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ電磁波放射

テラヘルツ電磁波は量子井戸中に生成された電子正孔対からも生じることがわかっている¹⁵⁾。このテラヘルツ電磁波放射は、光励起された電子と正孔が、量子井戸内の内部電場によって空間的に分離することで生じる双極子から放射される。過飽和吸収反射鏡は、誘電体多層膜の一端に単一量子井戸構造をもつためテラヘルツ電磁波光源となることが期待される素子であった。この観点から過飽和吸収反射鏡は、共振器内第二高調波発生のような共振器内に挿入可能な高効率かつ簡便である波長変換デバイスの一つの候補と考えることができる。さらに、過飽和吸収反射鏡は、レーザーの共振器内に配置により比較的大きな励起強度が得られるため、テラヘルツ電磁波の大出力化の点からも期待が持たれている。我々は過飽和吸収反射鏡を共振器内に配置して実験を行い、初めて過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ電磁波放射を確認した¹⁶⁾。しかしながら、出力は期待していたほど強くなく、ナノワット程度であったため、実験系に修正を加え、過飽和吸収反射鏡を磁場中に置き高出力化を行った。Fig.5に実験配置図を示す。チタンサファイヤレーザー共振器中に置かれた過飽和吸収反射鏡には、永久磁石による磁場1Tが印加されている。過飽和吸収反射鏡面上のレーザー光の励起面積径は直径2mm程度である。本実験において過飽和吸収反射鏡はテラヘルツ電磁波光源として用いたため、本来の目的であるモード同期素子としては用いてない。そのため、モード同期のために過飽和吸収色素を用いている。Fig.6に実測されたテラヘルツ放射のスペクトルを示す。半導体基板で得られたものとは異なり、およそ0.7THzを中心を持つ、非常に幅広いスペクトルが得られている¹⁷⁾。スペクトルに変調がかかっているのは、基板に用いたGaAsがテラヘルツ領域で透明であるため、表面と裏面からのパルスにより干渉縞が見えているためである。キャビティ内に置かれた過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ電磁波放射も、前章の半導体バルク同様、磁場印加により大きく増強された。これは光励起キャリアが磁場により加速されるためであると考えている。この過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ電磁波の発生の起源について、我々は内部の単一量子井戸構造であると考えているが、その他にも表面空乏層

Fig.5 Experimental setup for intracavity THz generation.

Fig.6 Spectrum of intra-cavity THz radiation from SBR (Saturable Bragg Reflector) under 1.7-T magnetic field.

や半導体基板からの効果もあると考えられる。したがって、この過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ電磁波の起源については、現在詳細な実験および考察を行っている。過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ放射強度は、磁場印加しないときに比べて桁違いに増大したものの、残念ながら現段階ではマイクロワットレベルに留まっている。この原因の一つに、過飽和吸収反射鏡の構造による効果が考えられる。これを改善するために、内部の量子井戸中のキャリアが磁場に対して応答しやすくなるような設計を試み、より強い強度のテラヘルツ放射を得られるように工夫していきたいと考えている。

4. 将来の展望

第1章でも述べたように、テラヘルツイメージング等の新技術を実現するには、明るく扱いやすい光源の研究開発が必要不可欠である。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新兵器となる。また、今までは不可能であった素励起の直接励起が可能になる。素励起、例えばフォノンの測定は、ラマン散乱をモニターすることでおこなわれていたが、フォノンモニターするには電子遷移(仮想遷移であっても)を経由するため、直接フォノンを励起することは不可能であった。しかしながら、テラヘルツ放射を用いれば直接フォノンを生成することがで

きる。電子系を変調することなくフォノンの物理を探ることができる。それには10THz付近のテラヘルツ放射光が必要となるが、最近Zhang等¹⁸⁾によりおよそ32THzまでも及ぶ、非常に幅の広いテラヘルツ放射生成が報告された。また、我々も光学配置の改良と条件の最適化を行い、サブミリワットクラスのテラヘルツ放射と、電磁石を1Tの永久磁石に置き換えた汎用システムで200μWのテラヘルツ放射を得ている。これらの技術は、夢のテーマであった物性の光による制御の実現だけでなく、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) R. A. Cheville and D. Grischkowsky: Opt. Lett. **20** (1995) 1646.
- 3) R. H. Jacobsen, D. M. Mittelman, and M. C. Nuss: Opt. Lett. **21** (1996) 2011.
- 4) J. Makhoul: Proc. IEEE **63** (1975) 561.
- 5) M. C. Nuss: Circuits and Devices, IEEE, March issue (1996) 25.
- 6) K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. McMahon, W. F. DiNatale, and T. M. Lyszczarz: Appl. Phys. Lett. **67** (1995) 3844.
- 7) M. A. Piestrup, R. N. Fleming, R. H. Pantell: Appl. Phys. Lett. **26** (1975) 418.
- 8) K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi, and H. Ito: Appl. Phys. Lett. **68** (1996) 2483.
- 9) M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, and S. Nakashima: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 2122.
- 10) S. L. Chuang, S. Schmitt-Rink, B. I. Greene, P. N. Saeta, and A. F. J. Levi: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 102.
- 11) N. Sarukura, H. Ohtake, S. Izumida, Z. Liu, and T. Yamanaka: Quantum Electronics and Laser Science Conference, Postdeadline Papers, QPD20 May, Baltimore (1997). To be published in J. Appl. Phys.
- 12) P. C. M. Planken, M. C. Nuss, W. H. Knox, D. A. B. Miller, and K. W. Goossen: Appl. Phys. Lett. **61** (1992) 2009.
- 13) X.-C. Zhang, Y. Jin, L. E. Kingsley, and M. Weiner: Appl. Phys. Lett. **62** (1993) 2477.
- 14) H. Ohtake, S. Izumida, Z. Liu, T. Yamanaka, and N. Sarukura: IEEE Lasers and Electro-Optics Society, ThK2 Nov., San Francisco (1997).
- 15) for example, P. C. M. Planken, M. C. Nuss, W. H. Knox, D. A. B. Miller, and K. W. Goossen: Appl. Phys. Lett. **26** (1992) 2009.
- 16) N. Sarukura, Z. Liu, H. Ohtake, S. Izumida, T. Yamanaka, Y. Segawa, T. Itatani, T. Sugaya, T. Nakagawa, and Y. Sugiyama: Jpn. J. Appl. Phys. **36** (1997) L560.
- 17) N. Sarukura, H. Ohtake, Z. Liu, T. Itatani, T. Sugaya, T. Nakagawa, and Y. Sugiyama: Jpn. J. Appl. Phys. **37** (1998) L125.
- 18) Q. Wu and X.-C. Zhang: Conference on Laser and Electro-Optics, Postdeadline Papers, CPD3 May, Baltimore (1997).

レーザーワード

テラヘルツ電磁波(THz-radiation)

テラヘルツ電磁波は、テラヘルツ領域(1THz, 300μm, 33cm⁻¹ = 4.1meV)の電磁波を示す。この領域は、いわば電波と光の端境領域であり、今まで適切な光源や検出器が少なかったため、未発見、未解明の様々な現象が数多く

潜んでいると考えられている領域である。しかし、その透過特性や電波開発の意味から、新たな画像システムや通信の手段となるため、大きな期待が寄せられている。

(大竹 秀幸)