

研究課題別評価書

1. 研究課題名

高感度テラヘルツ光学活性計測技術の開発

2. 氏名

島野 亮

3. 研究のねらい

光と電波の中間に位置するテラヘルツ(THz)周波数帯では、半導体の自由キャリア応答や誘電体のフォノン、生体分子の分子振動等、多くの物質系で固有の応答が観測される。近年、超短光パルス(フェムト秒)レーザーの進歩普及とともに、未開拓であったこの周波数帯でのコヒーレントな光源および検出技術が大きな進歩を遂げつつあり、様々な物質の計測分析手法として急速に発展しつつある。本研究は、この THz 波の「偏光」に着目し、時間空間コヒーレンスの優れた THz パルスの特徴を活かして、高感度の THz エリプソメトリーの開発し、光学活性計測、磁気光学測定へと応用することを目的とした。

4. 研究成果

4-1)テラヘルツ帯の円偏光変調法の開発

可視光あるいは中赤外領域の偏光測定では、偏光子、波長板、偏光変調器等の光学素子が確立しており高精度の偏光測定が行われている。一方、THz周波数帯では、偏光子としてはワイヤグリッド偏光子が用いられるが、簡便な波長板や偏光変調素子が欠如していた。そこで、THz周波数帯での偏光計測技術を支える一つの素子として、本研究では波長可変の円偏光発生器を開発した。原理を図1上段に示す。偏光の直交するフェムト秒光パルス対でTHz波パルス対を発生させ、光パルス対の間隔を変えることにより、それぞれから発生するTHz波の位相を変調し、実効的に偏光を制御することができる。この原理により 0.3-2.5THz(1.2-10meV、 $10-83\text{cm}^{-1}$)の範囲で可変な円偏光発生器を開発した(図1下段)。

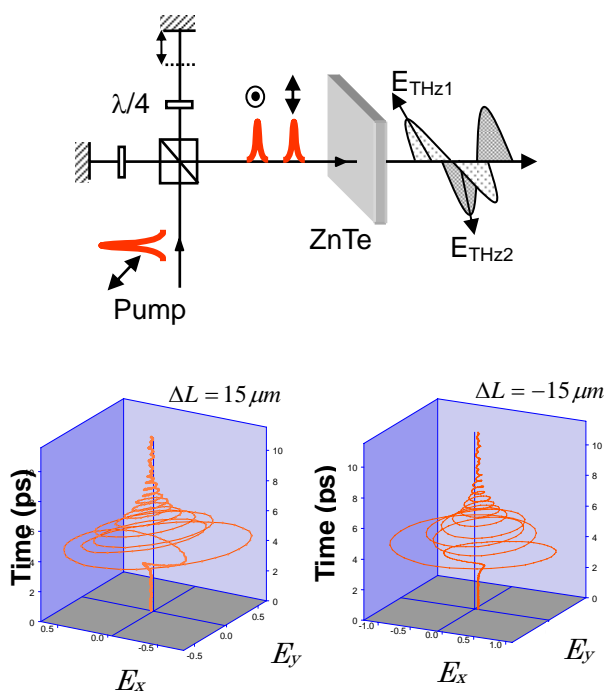


図1 上段:光パルス対による円偏光テラヘルツ波発生のご概念図。下段:生成された円偏光テラヘルツ電場の軌跡。光パルス対の間隔を変えることで左回りから右回りへと楕円率を制御できる。

4-2) 高いダイナミックレンジを有するテラヘルツ分光系の開発

高感度偏光計測のために、THz 検出の SN 比の向上を行った。THz 波発生には p 型 InAs 表面からの高強度 THz 波発生を用い、THz 波検出には量子雑音(ショットノイズ)レベルで動作する差動光検出器による EO サンプリング法を用いて、電場振幅にして 5 桁、強度で 11 桁弱(図 2)に及ぶ高いダイナミックレンジを有する簡便な THz 分光法を確立した。

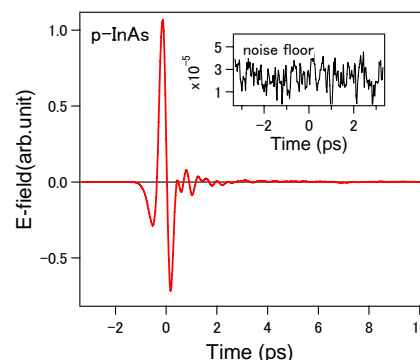


図 2 THz 波の電場時間波形

4-3) THz ファラデー効果測定による半導体の非接触キャリア濃度及び移動度の評価

上記の高い SN 比を有する THz 分光法を用いて、磁気光学ファラデー効果を高感度に計測する手法を確立した。磁気光学ファラデー効果は、磁場下あるいは磁化がある試料に直線偏光の光(ここでは THz 波)が入射した際、透過波の偏光面が回転する現象である。偏光回転角は物質中のキャリア濃度および磁場(磁化)に依存することから、回転角測定から非接触にキャリア濃度を決定することができる。本研究では直交検光子配置(クロスニコル配置)を採用し、ファラデー回転角にして 1 ミリラジアン以下の偏光回転検出感度を達成した。同計測手法を用いて半導体のキャリア濃度を高感度非接触に評価することが可能となった。図 3 に一例として、厚さ 525 μm の n 型 Si 基板でファラデー回転角と楕円率角スペクトルを計測した結果を示す。得られたスペクトルからドルーデモデルによるフィッティングを用いて、キャリア濃度と移動度を非接触で決定することができる。その温度依存性を図 4 に示す。10¹³ cm⁻³ 以下の低いキャリア濃度領域でもその評価が可能であることを実証した。比較のため、直流(dc)ホール効果測定により決定したキャリア濃度、およびこれと

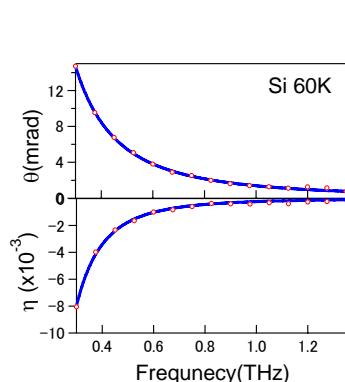


図 3 n 型 Si 基板のファラデー回転角 θ と楕円率 η 。磁場は 0.01 T。実線はドルーデモデルによる理論曲線。フィッティングからキャリア濃度 $6 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ 、移動度 $1.7 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ と求まる。

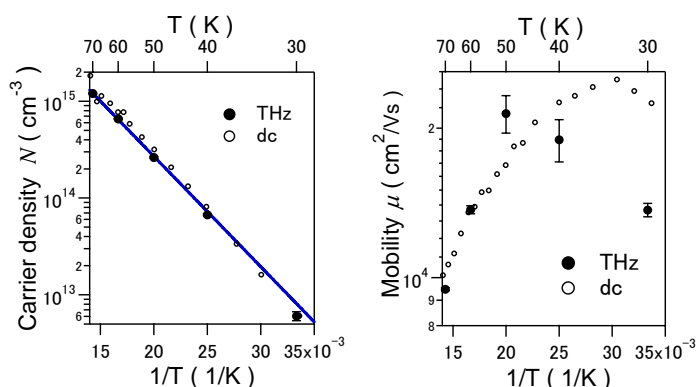


図 4 Si のキャリア濃度(左)と移動度(右)の温度依存性。黒丸: THz ホール効果計測によるもの(非接触法)。白丸: 直流ホール効果測定、電気抵抗測定によるもの(接触法)。ドナー(P)からの熱励起モデルによる理論曲線。

抵抗測定から見積もられた移動度を白丸で示している。THz分光法で評価されたキャリア濃度はdc電気伝導測定の結果とよく一致しており、Siに関してはdc測定と相補的な非接触キャリア濃度評価として有用であることが確認できた。温度依存性はドナーからの熱励起による理論でよく説明され、これよりドナー束縛エネルギーを45meVと決定した。移動度も高温60K以上ではTHz測定とdc測定とはよく一致している。低温ではdcホール測定との差異が見られたが、これはキャリアの散乱機構のエネルギー依存性を反映している可能性がある。

4-4) 低温強磁場環境下でのテラヘルツ分光システムの開発

高感度 THz ファラデー効果計測の対象範囲を広範な物質に拡張するために、低温($\geq 1.6\text{K}$)、強磁場($\leq 7\text{T}$)環境下での THz 分光システムの開発を行い、同システムに偏光計測手法を導入した。同装置を用いて、半導体のサイクロtron共鳴スペクトルの観測が可能になった(図5左)。また、偏光計測から、サイクロtron共鳴周波数領域でのファラデー回転スペクトルと楕円率(円二色性)スペクトルの観測(図5右)、交流ホール伝導度スペクトルの評価が可能になった。

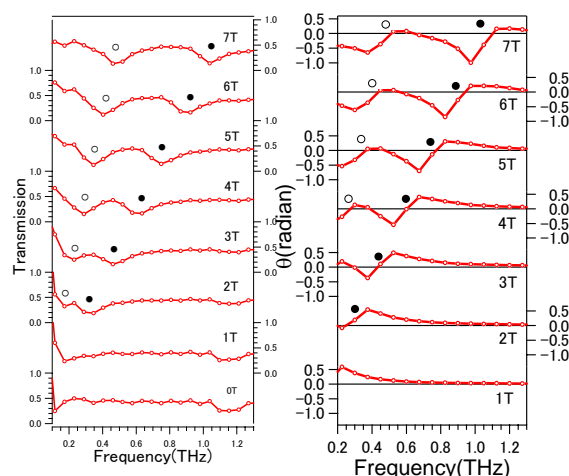


図5 n型Siにおけるサイクロtron吸収スペクトル(左)とファラデー回転角スペクトル(右)の磁場依存性。二つの有効質量に対応する共鳴吸収(●、○)が観測される。ファラデー回転角は共鳴前後で分散型を示す。

5. 自己評価

本研究では、テラヘルツ波を用いた高感度の光学活性計測法の開発を主眼とした。特にミリラジアン以下の偏光回転角を低温かつ磁場環境下で計測する技術を確立し、広範な物質系で非接触ホール効果計測を可能にすることを目指した。さらにTHz光学活性計測を分子キラリティ計測に応用することも検討した。当初段階では、THz波の高出力下のために大がかりなフェムト秒レーザー増幅システムが必要になることが予想された。また低温磁場中でのTHz偏光分光装置は、クライオスタット窓材の制約により難航することが予想されたが、THz波発生法、発生素子、検出法、検出器、偏光分光法それぞれの要素で最適化を進めた結果、レーザー増幅器を用いることなく 15cm^{-1} – 70cm^{-1} (2meV – 8meV)の周波数範囲で、目標としたミリラジアン以下の高感度偏光回転計測を実現することができた。低温磁場中のTHz偏光分光は、異常ホール効果の起源の解明、量子ホール効果のダイナミクス、高温超伝導体を含めた強相関電子系のキャリア散乱機構の探求など、物性物理学研究における新計測技術及び物質開発を支える新技術として有用な手法となる。本研究の期間内では、同手法を金属超伝導体に適用し、磁束量子の運動機構をピン止めの影響を受けずに探ることも可能となった。また本手法によって、光学的に、即ち非接触にキャリア濃度を広い濃度範囲で計測することが可能になった。実証実験として、半導体Si基板(厚さ $525\mu\text{m}$)の

キャリア濃度、移動度評価を行った結果、 10^{13}cm^{-3} 以下の低キャリア濃度までの評価が可能であることがわかった。これは従来のTHz分光法の検出可能キャリア濃度範囲を約 2 桁拡張させるものであり、薄膜や界面の伝導特性評価への応用も興味深い。高い検出感度を簡便なレーザー発振器単体のシステムを用いて達成できたことで、本手法は今後広く普及発展するものと期待される。当初提案した円偏光変調法は期待通りに実現しTHz領域での円偏光生成と制御のさきがけとなった。これらの成果は本さきがけ研究のもと、新しい計測手法の開発に正面から取り組むことができたことに因る。本研究では、新しい分子構造評価法としてキラル分子の光学活性計測も視野に入れ、テラヘルツ帯に吸収のあるアミノ酸結晶粉末や螺旋ポリマー試料の計測を行ったが、効果は小さく有意な信号を得ることができなかった。試料による偏光解消効果を低減するとともに試料構造最適化を進める必要があると考えられる。

6. 研究総括の見解

高感度な光学活性計測、磁気光学効果測定を可能とするテラヘルツ周波数帯エリプソメトリーを開発し、半導体の非接触伝導特性評価、低温強磁場環境下でのテラヘルツファラデー効果計測、高温超伝導体の強磁場下でのテラヘルツ分光などへ展開した。主たる成果は次の2点である。

- ①テラヘルツ発生方法、テラヘルツ周波数帯で波長可変な円偏光発生器、高いダイナミックレンジを持つテラヘルツ分光系などの光学測定システム全体に抜本的な要素技術の改善を積み重ね、テラヘルツ領域でミリラジアン以下の高感度偏光回転計測を実現した。
- ②上記分光法を用いた磁気光学測定により、従来は困難であった低キャリア濃度半導体の非接触キャリア濃度評価、低温強磁場中の半導体のサイクロトロン共鳴周波数領域のスペクトル測定などに成功した。

これらの研究成果は2篇の原著論文、4件の学会招待講演にまとめられている。

上記以外にも超伝導体薄膜への適応、キラル高分子計測への適用を進めるなど、幅広い分野に対する実用性を証明しつつあることは高く評価できる。これらの成果を基に、平成19年10月より強相関電子系のスピン構造をプローブする手法開発を狙うERATO十倉マルチフェロイクスプロジェクトのグループリーダーとして活躍していることも評価できる。今後、この手法でなければ見えない数多くの現象の観察が可能となると予測され、物性物理研究に対する波及効果は極めて高いと考えられる。

7. 主な論文等

(A)さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1)論文(原著論文)発表

論文(国際)

- ・ R. Shimano, H. Nishimura, T. Sato, "Frequency Tunable Circular Polarization Control of Terahertz Radiation", Japanese Journal of Applied Physics 44, L676-L678 (2005)
- ・ Y. Ikebe and R. Shimano, "Characterization of doped silicon in low carrier density region

by terahertz frequency Faraday effect”, Appl. Phys. Lett. 92, 012111 (2008)

(2)特許出願 なし

(3)著書

・ 島野 亮 テラヘルツ技術総覧(執筆分担)「磁気光学」、(有)エヌジーティー、2007 年

(4)学会発表

口頭発表(国内)

・ 島野 亮 “高感度 THz 磁気光学測定と半導体評価への応用”、応用物理学会 THz 電磁波技術研究会 主催「テラヘルツデバイス研究会」、2005 年

・ 池辺洋平、島野 亮 “THz 時間領域分光法による n 型 Si の高感度ファラデー効果測定”、日本物理学会 2007 年春季大会

・ 池辺洋平、島野 亮、池田将洋、福村知昭、川崎雅司 “ THz 時間領域分光法による超伝導 NbN 薄膜の磁場下伝導度測定”、日本物理学会 2007 年秋季大会

ポスター発表(国際)

・ 池辺洋平、島野 亮 “High Sensitive THz Faraday Rotation Measurements in Doped Semiconductors(ドーピング半導体の高感度テラヘルツファラデー効果測定)”、量子エレクトロニクスに関する国際会議(CLEO/QELS2007)、2007 年

ポスター発表(国内)

・ 西村久明、島野 亮、“周波数可変円偏光テラヘルツ波の発生法の開発”、日本物理学会 2005 年秋季大会

(5)招待講演

招待講演(国際)

・ Ryo Shimano, Terahertz Hall measurements by magneto optical spectroscopy, The 3rd COE workshop “Frontiers of Laser and Optical Sciences”, 2005

・ Ryo Shimano, Terahertz spectroscopy of multiferroics and superconductors, 2007 CERC International Symposium, 2007

・ Ryo Shimano, Low energy electromagnetic responses of Condensed matter, 1st Joint workshop between Yonsei University and Tokyo University, 2007

招待講演(国内)

・ 島野 亮、“テラヘルツエリプソメトリーの開発”、第 52 回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム「テラヘルツ波による化学・バイオ・電子材料評価の最前線」、2005 年

(B) その他の主な成果

(1)論文(原著論文)発表 なし

(2)特許出願 なし

(3)学会発表

口頭発表(国内)

- ・ 貴田徳明、池辺洋平、島野亮、山崎裕一、有馬孝尚、十倉好紀 “テラヘルツ電磁波時間領域分光法を用いたマンガン酸化物強誘電体における磁気励起の観測”、日本物理学会 2007 年春季大会