

「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」
平成 21 年度採択研究代表者

田中 耕一郎

京都大学 物質—細胞統合システム拠点 教授

高強度テラヘルツ光による究極的分光技術開拓と物性物理学への展開

§ 1. 研究実施の概要

本提案はフェムト秒レーザーをもちいた高強度テラヘルツ光発生を高度化し、究極的なテラヘルツ分光技術の開拓とその物性物理学や生命科学への展開を狙うものである。具体的には、(1)波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもちいた非線形分光、(2)半導体量子メタ構造によるテラヘルツデバイスの構築、(3)リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用、の研究を進めている。平成21年度は、研究基盤の整備を進めるとともに、下記のような成果が得られた。(1)レーザー誘起ガスプラズマによる高強度広帯域テラヘルツ波発生とテラヘルツカメラによる最適化。(2)高強度 THz 光による ZnSe/ZnMgSSe 多重量子井戸および GaAs/GaAlAs 多重量子における非摂動論的非線形光学応答の観測。(3) 10^8 オーダーの Q 値をもつ SiO₂ トロイド型微小共振器の作製。(4) 数値シミュレーションによるポリマーをベースとするフォトニック結晶導波路の設計。(5)テラヘルツ近接場顕微鏡の空間分解能向上手法の確立。今後、高強度 THz 光の波長可変化をおこなうことで系統的に半導体のテラヘルツ非線形光学実験を進めると主に、波長の1/100の空間分解能を有する近接場顕微鏡の開拓を目指す。

§ 2. 研究実施体制

(1)「京都大学」グループ

① 研究分担グループ長: 田中 耕一郎(京都大学、教授)

② 研究項目

- 1) 波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもちいた非線形分光
- 2) 微小共振器—量子ドット結合系のテラヘルツ精密分光とコヒーレント制御
- 3) リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

(2)「広島大学」グループ

- ① 研究分担グループ長:角屋 豊(広島大学、教授)
- ② 研究項目
 - 1) 半導体量子構造における非線形分光とテラヘルツスイッチ
 - 2) テラヘルツ非線形性発現に適した半導体量子メタ構造

(3)「オリンパス」グループ

- ① 研究分担グループ長:雙木 満(オリンパス株式会社、課長代理)
- ② 研究項目
 - リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

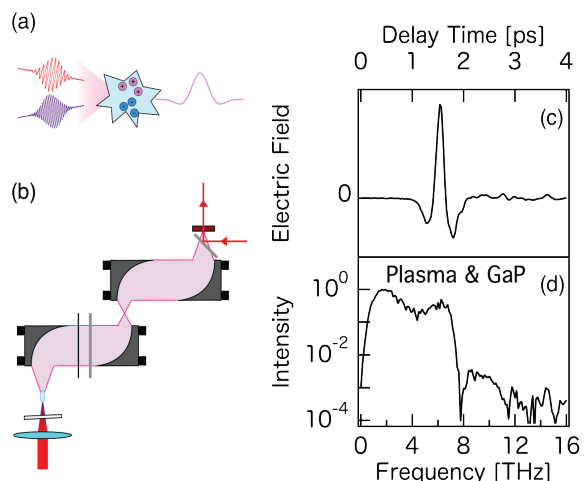
§ 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する。)

(1)「京都大学」グループ

1) 波長可変高強度テラヘルツ光源開拓とそれをもたらした非線形分光

本研究では、狭線幅・高強度テラヘルツ波長可変光源を開発し、半導体をターゲットにすえた究極的な非線形分光を探索・実現する。特に、摂動論では記述不可能な非線形効果が主役を担うテラヘルツ領域の非線形分光技術を確立し、固体物理学の新しい局面を拓く。テラヘルツ光領域で顕著に現れることが期待される非摂動論的非線形効果を共鳴効果や周波数依存性などの観点から詳細に調べるための波長可変高強度テラヘルツ光源開発をおこなう。今年度は、現在の高強度モノサイクルテラヘルツ光源技術にチャープ光+マイケルソン干渉計を加えた高強度波長可変テラヘルツ光源の技術検討をおこなうとともに、レーザー誘起ガスプラズマによる高強度テラヘルツ波発生をおこなった。また、半導体バルク試料や広島大学で作製された GaAs 薄膜や量子井戸をもちいて、非摂動論的なテラヘルツ非線形光学の実験をおこなった。



① 高強度テラヘルツ光源の開拓

高強度超短パルスレーザーにより作られた大気プラズマからの THz 発生は、破壊閾値が存在せず、位相整合条件などに

図 1-1 プラズマによる THz 発生の概念図 (a), 実験配置図 (b), テラヘルツ光の実時間波形 (c) およびスペクトル (d)

よる帯域の制約もないことから、高強度で広帯域なテラヘルツ光源の魅力的な候補の一つである。図 1-1 (a)に本研究で用いた発生法の概念図を示す。高強度レーザーを絞ることにより作り出した大気プラズマに、波長 800 nm と 400 nm の超短パルス光が同時に入射するとプラズマの電荷分布に非対称性が生じ双極子として振る舞いテラヘルツ光を発生させる。効率よいテラヘルツ光の発生のためには、基本波と倍波の位相を精密に制御する必要がある。図 1-1(b)に実験配置図を示す。光源には Ti-Sapphire 再生増幅器からの波長 800 nm、パルスエネルギー 3 mJ、パルス幅 45 fs のパルス光を用いた。レンズの焦点に作り出されたプラズマの直前に BBO 結晶をおき倍波を発生させる。基本波と倍波の位相は、BBO 結晶の屈折率異方性および屈折率分散を利用し、結晶を傾けることで微調整した。励起レーザー光の遮断には、完全に遮断するための Si プレートと Si での光励起によるキャリア生成を抑えるためポリプロピレン薄膜を用いた。図 1-1(c)に GaP を用いた EO サンプリングにより得られたテラヘルツ光の時間波形を示す。図 1-1(d)は発生したテラヘルツ光のスペクトルである。0.5 - 10 THz にわたる広帯域かつ高強度なテラヘルツ光の発生に成功した。さらに、テラヘルツ光に感度があるマイクロボロメーターカメラでテラヘルツ光の空間分布を観測することで、アイリスによる励起レーザー光のビームパターン整形がテラヘルツ光の空間モード改善に有効であることがわかった。最終的には、テラヘルツ光のスポット径を $70 \mu\text{m}$ 程度まで絞ることに成功した。

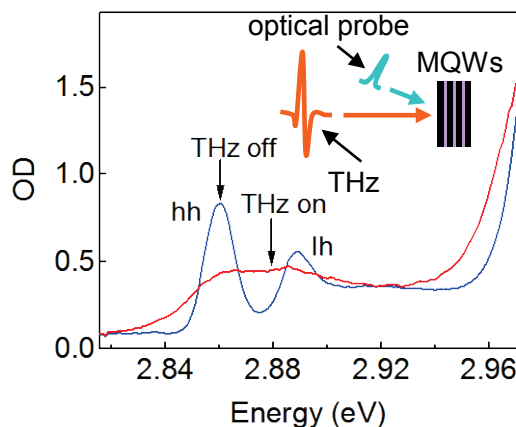


図 1-2 テラヘルツによる ZnSe/ZnMgSSe 多重量子井戸のバンド端近傍の吸収変化。挿図は実験の模式図。

② 半導体における非摂動論的非線形光学

高強度テラヘルツポンプ白色光プローブの実験系を構築し、ZnSe/ZnMgSSe 多重量子井戸のバンド端近傍の可視光応答がピコ秒 (10^{-12} 秒) の時間内に示す非線形光学応答を観測した。特に II-VI 半導体の励起子束縛エネルギーは比較的大きく、励起子準位に非共鳴な THz 励起によって摂動論では説明できない励起子光学応答を調べることができる。図 1-2 はテラヘルツパルス(ピーク電場振幅 68 kV/cm)が照射されているとき(赤)またテラヘルツパルスが照射されていないとき(青)の吸収スペクトルであ

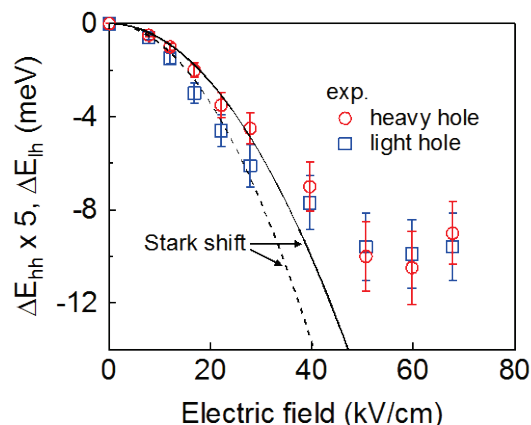


図 1-3 励起子のピークエネルギーのテラヘルツ電場依存性。実線 (hh) と破線 (lh) はシュタルク効果の計算曲線。

る。2.92 eV 以上でバッファ層 (ZnMgSSe) のバンド端吸収が増加し、また、井戸層 (ZnSe) の励起子吸収のピークが減少し線幅が広がっている。バンド端吸収の変化は動的フランツケルディッシュ (DFKE) 効果によるものと考えられる。励起子吸収線幅の増大は、励起子寿命の減少を意味しており、イオン化によって励起子寿命が短くなっていることを示している。図 1-3 に示すように、励起子ピーク位置の電場強度依存性はシュタルク効果だけでは説明できず、励起子束縛エネルギーの減少と DFKE 効果という非摂動論的效果が誘起されている可能性が高い。ここでの成果は THz 周波数で動作する次世代の電子デバイス開発へ指針を与え、さらに近年原子・分子気体において盛んに研究されている高次高調波発生を固体中の励起子に置き換えて実現するという新たな研究分野を切り拓くものとしても期待される。

こうした応答は、有効質量の小さな物質系を採用することで顕在化することが期待される。そこで本研究では GaAs 量子井戸に注目し、高強度テラヘルツパルス照射によるバンド端近傍の吸収スペクトル変化を測定した。そこで広島大学において作製された GaAs 量子井戸薄膜試料で同様の実験をおこなった。図 1-4 の挿入図に GaAs 量子井戸のバンド端近傍での吸収スペクトルを示す。重い正孔の励起子による吸収ピークが 12kV/cm の電場強度テラヘルツパルス照射でブロードになり、励起子エネルギーがブルーシフトしていることがわかる。図 1-4 にこの時の励起子エネルギーのシフト量をテラヘルツ電場強度の関数として示した。テラヘルツ電場強度が比較的弱いときはレッドシフトを示すのに対して、電場強度の増加とともにブルーシフトに転ずることがわかった。これは、ZnSe 量子井戸においてはレッドシフトだけが観測されていたのと同対照的である。こうした励起子エネルギーのブルーシフトは動的 Franz-Keldysh 効果によるものであると考えられ、非摂動論的過渡応答が支配的であることを示している。

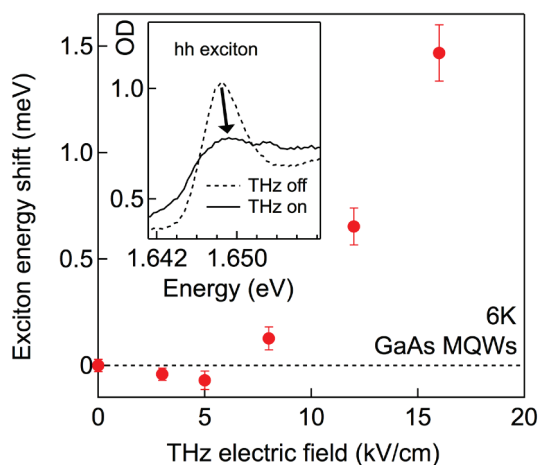


図 1-4 GaAs 励起子のピークエネルギーのテラヘルツ電場依存性。挿入図は THz 照射時と非照射時の励起子吸収スペクトル

2) 微小共振器—量子ドット結合系のテラヘルツ精密分光とコヒーレント制御

微小共振器—単一量子ドット結合系の構築に向け、その構成要素である微小共振器の開発を行った。フォトリソグラフィ、ウェットエッチング、ドライエッチングの組み合わせにより、Si 基板上に SiO₂ ディスク構造を作製し、CO₂ レーザー照射アニール処理によりトロイド型微小共振器を作製した。フォトリソグラフィにおけるレジスト膜厚、露光時間やウェットエッチング・ドライエッチングの条件を最適化することで、性質の揃ったトロイド型微小共振器を再現性良く作製することに成功した。作製した共振器の光学特性を測定したところ、10⁸ オーダーの Q 値が得られた。

3) リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

オリンパスグループと共同で回折限界を超えた空間分解能を有しビデオレートで動作するテラヘルツ近接場顕微鏡を開拓する。本年度は、これまでの励起光源である $600 \mu\text{J}/\text{pulse}$ のフェムト秒レーザーを $2\text{mJ}/\text{pulse}$ のフェムト秒レーザーに交換し、新たな光学系で近接場顕微鏡を再構築した。その結果、これまでのテラヘルツ光強度を大きく上回る結果が得られた。また、試料上でのテラヘルツ光の集光を最適化するために、テラヘルツ領域に感度があるカメラをもちいてテラヘルツ光の空間パターンを観測した。その結果、収差などの効果をなくし集光条件最適化するのにテラヘルツカメラが非常に有効であることを明らかにした。

(2)「広島大学」グループ

1) 半導体量子構造における非線形分光とテラヘルツスイッチ

代表者グループと共同して半導体量子井戸構造におけるテラヘルツ非線形応答を明らかにするとともに、これを用いたテラヘルツスイッチを実現することが目的である。広島大学グループは主として半導体量子構造の作製とテラヘルツ測定に適した形への素子化を担当している。

今年度は、1) 既に保有していた半導体量子井戸試料を透過測定が容易になるように、薄膜化して透明基板にボンディングした素子を作製し、京都大学グループに供給した。この素子を用いた高強度テラヘルツ応答の研究に関しては、京都大学グループの項目に記載されている。また、2) 自由空間を伝搬するテラヘルツ波の電界を簡便に増強する手法として、ダイポールアンテナを用いることを検討した。数値シミュレーションの結果、図 2-1 に示すように、ダイポールギャップを数マイクロン以下にすることで、共鳴周波数において 70 倍の電場増強が得られることを見出した。この手法は多くの半導体構造に適用可能であり、またダイポールの組み合わせにより直線偏光だけでなく円偏光に対しても増強を実現しえる可能性を持っており、テラヘルツ波による量子井戸励起子の制御などに有効であると考えている。電場増強の実証に関しては、京都大学グループと共同で作業が進行中である。

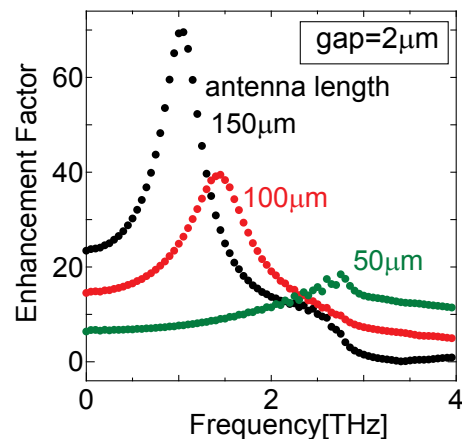


図 2-1 ダイポールアンテナギャップにおける電場増強のシミュレーション結果

2) テラヘルツ非線形性発現に適した半導体量子メタ構造

本研究の目的は、メタルと誘電体フォトニック結晶からなるテラヘルツ導波路キャビティを開発し、半導体量子井戸をキャビティ中に埋め込むこと、および THz 波を素子外部から効率よく結

合するためのカップラーおよび導波路内で発生するための機構を開発することである。最終的には、再生増幅を使用しない程度の励起パルス光でテラヘルツ非線形を発現させることを目指している。

今年度は数値シミュレーションによりポリマー (BCB; 誘電率 2.05) をベースとするフォトニック結晶導波路の設計を行った。透明ポリマーの比誘電率は、光および THz 領域で良く報告されているフォトニック結晶の材料である Si (誘電率 11.9) に比べて研究例が圧倒的に

少ない。フォトニックバンドギャップは狭くなると考えられるので、低誘電率ポリマーを用いたフォトニック結晶の光学特性を系統的に調べる必要があった。バンド計算には RSOFT 社の BandSolve を用いた。比較のため、Si を用いる場合の計算も行った。検討した構造は、空気ロッド・誘電体ロッドに対して、正方・三角格子の 4 種類である。モードは TM(電場がロッドに平行)と TE(電場がロッドに垂直)の 2 モードを考慮した。得られた結果のまとめを図 2-2 に示す。Si では大部分の構造でフォトニックバンドギャップが開くのにに対して、ポリマーでは三角格子の誘電体ロッドで TM モードにおいてのみギャップが開くことが分かった。これはポリマーの誘電率が低いためにギャップが Si の場合に比べて狭くなるためである。誘電体ロッド構成でギャップが開くことは、線欠陥伝送路を構成した場合に伝搬層が空気となって低損失が得やすいことから、非常に望ましい。また、TM モードは、メタル平行板による閉じ込めとの整合性や、埋め込んだ量子井戸への垂直電場印加の観点からも望ましい。

三角格子誘電体ロッド構成においてロッド半径 R を変化させた場合のバンドマップを図 2-3 に示す。横軸は格子定数 a を単位としている。バンドギャップが最も広がるのは $R=0.28a$ のときであるとわかった。また、この構造に対して有限差分時間領域法(みずほ総合研究所 EMERGE)でも同じ結果が得られることを確認した。

以上のようにフォトニック結晶導波路の基本構成を決定した。このほかに素子作製のための準備として、ICP プ

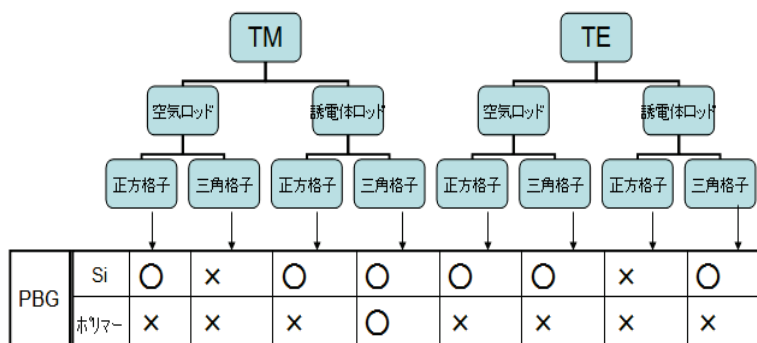


図 2-2 フォトニックバンドギャップ形成の可否のまとめ

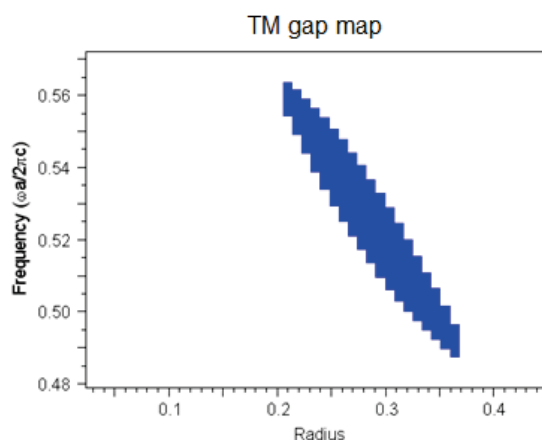


図 2-3 三角格子誘電体ロッド構成におけるバンドマップ

ラズマエッチング装置の発注、分子線エピタキシ結晶成長装置のメンテナンス等を行った。

(3)「オリンパス」グループ

リアルタイムテラヘルツ近接場顕微鏡の開拓と応用

本年度はテラヘルツ近接場顕微鏡の空間分解能向上の検討に取り組んだ。具体的には、高い空間分解能を実現するために必要な条件を見積もる計算環境の構築を行った。

テラヘルツ近接場顕微鏡ではテラヘルツ波の検出に電気光学結晶を用いており、試料を電気光学結晶上に直接載置することで、試料を透過したテラヘルツ波が回折する前にその情報を取得し、高い空間分解能を実現している。電気光学結晶を薄くすれば、より試料に近い領域のテラヘルツ波のみを検出できるようになり、空間分解能の更なる向上が期待できる。しかし、電気光学結晶の厚さと空間分解能の関係を定量的に評価する手段が無く、目標の空間分解能を実現するために必要な電気光学結晶の厚さを見積もることができなかった。

本年度は、電気光学結晶の必要な厚さを見積もるための計算環境の構築に取り組んだ。図 3-1(a) は計算のセットアップを示したものである。ZnTe 結晶の上部に金属薄膜を配置してその上方からテラヘルツ波を照射した場合に、撮像素子位置(図示略)で取得される画像を FDTD と光学計算を用いて計算している。図 3-1(b)、(c)より、結晶を薄くすることによって観測される金属薄膜のエッジ部が鮮明になり、空間分解能が向上している様子が見取れる。また、得られた画像を解析することで各々の場合の空間分解能を算出することができ、電気光学結晶の厚さと空間分解能の関係を定量的に評価できる。このように、電気光学結晶の厚さから空間分解能を定量的に評価できる計算環境を構築することができた。今後は、実験と計算との比較を行いながら、引き続き空間分解能向上の検討を進めていく。

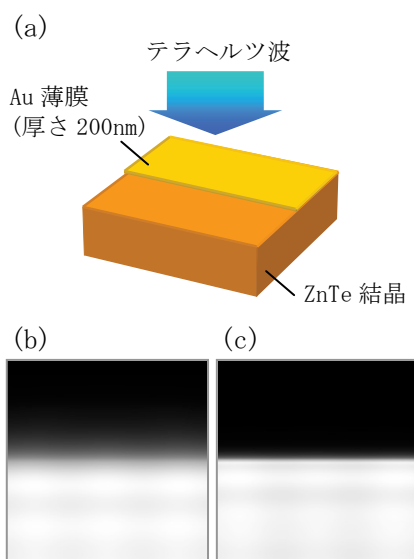


図 3-1 計算モデル(a)と、ZnTe 結晶の厚さが 200 μ m(b)及び 20 μ m(c)の場合の計算結果

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

H. Hirori, M. Nagai, and K. Tanaka, "Excitonic Interactions with Intense Terahertz Pulses in ZnSe/ZnMgSSe Multiple Quantum Wells", Phys. Rev. B 81, 081305(R) (2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.81.081305

(4-2) 知財出願

- ① 平成 21 年度特許出願件数(国内 2 件)

- ② CREST 研究期間累積件数(国内 2 件)