

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13345

研究課題名(和文)量子干渉を用いたフォノン系テラヘルツ光源の開拓

研究課題名(英文)Study on THz light source using quantum interference in phonon system

研究代表者

石谷 善博(Yoshihiro, Ishitani)

千葉大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：60291481

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文):量子カスケードレーザ等で困難な室温以上かつ10THz程度の連続レーザ発振実現のため、狭帯域のフォノン・光相互作用幅に着目して半導体のLOフォノンやLOフォノン-プラスモン結合モードに共鳴する電気双極子輻射生成と光学利得をもたらす電磁誘起透明化の発現を研究目的とした。その結果多くの半導体で表面に金属ストライプを作製した構造でLO共鳴の電気双極子生成が確認され、GaAsでは約280/cmで半値幅13/cmの発光を628Kで観測した。GaInPでは2種LOフォノン生成と価電子帯間遷移の量子干渉により吸収スペクトル制御が可能であることが分かり、LOフォノン系での低閾値レーザの可能性が示された。

研究成果の概要(英文):The research theme is the THz emission resonating with LO phonon or LO phonon-plasmon coupling modes and the control of optical absorption by using quantum interferences in the frequency region where the lasing in continuous mode at temperatures higher than room temperature is difficult for former devices and the electromagnetic transparency to obtain optical gain at the frequency region. It has been found that the electric dipoles resonating with LO phonon are generated in the metal/semiconductor stripe structures on the surface for various materials. The emission at approximately 280/cm and with the width of 13/cm has been obtained for GaAs. The control of optical absorption by the quantum interference in the system consisting of 2 LO modes and intervalence band transition has been found for p-GaInP. These results reveals that the ultra low threshold lasing is possible using LO phonon system.

研究分野：半導体光物性

キーワード：LOフォノン THz発光 界面フォノンポラリトン THz吸収 量子干渉

1. 研究開始当初の背景

THz 域の光発生は様々な手法で行われている。コンパクトな光源としては、量子カスケードレーザ(QCL)や共鳴トンネルダイオード(RTD)がある。前者において波長約 10 μm 程度以上では室温動作の困難性の他に InGaAs 系ではフォノン散乱により 5-12THz 領域の発振の困難性があり、窒化物では厚さ 1nm 足らずの層の多層構造における面内均一さと再現性に高いハードルがある。後者のデバイスでは数 THz 以上の短波長化が困難になっている。その他、半導体へのフェムト秒(fs)レーザ入射による表面付近 LO フォノン プラズモン結合(LOPC)モードの誘起や 2 光波の差周波生成などが、連続光生成や光伝導アンテナと電荷振動の結合効率の増加などに課題がある。我々は、光の相互作用エネルギー幅が数 cm^{-1} と電子比べて小さく、かつ温度上昇に対する変化も小さいフォノンに着目して、フォノン系を用いた発光を得ることを狙っている。TO フォンは光の吸収・放出が一般に可能であるが、その波長域における物質の高い屈折率のために外に光をとりだすことが困難である。一方 LO フォンでは一般に吸収・発光ができないが、それを可能にする構造があれば、場所を選択した発光構造を作製することが可能になる。

Berremán は銀基板上に製作した LiF 膜の p 偏光光反射スペクトルにおける LO フォノンエネルギー近傍における鋭い反射ロスが LiF 膜の表面と裏面に生じている分極電荷に由来する電気双極子による吸収であることを提唱した¹⁾。しかし、Berremán の観測した現象は、光の干渉効果およびその他の幾つかの現象に関する検討を経て、近年では界面フォノンポラリトン(IPhP)生成による吸収効果であるという見方が強まった。我々は、減衰全反射(ATR)分光を用いて IPhP による強い光吸収の他に IPhP のエネルギー分散に合わない小さな吸収が生じていることを見出した²⁾。これに対して、表面での横方向の構造により s 偏光の強い吸収を得て電気双極子吸収が起きていることを Ti/GaN ストライプ構造における s 偏光反射スペクトルにおける反射ロスやラマン散乱による新たなピークの観測により実証した。本結果は本科研費実施期間において公表された。(5-[雑誌論文]4))しかし、この電気双極子による発光はこれまで観測されていなかった。また、我々は、フォノン系でレーザを実現する場合に有効となる電磁誘起透明化による光吸収スペクトルの制御に関する研究を本萌芽研究以前に開始していた。この電磁誘起透明化は 2 種の離散準位の遷移(LO フォノン生成)と電子系の連続準位間遷移による量子干渉に基づくものを対象とし、既に同一振動面に 2 種の LO モードと価電子帯電子遷移の量子干渉を研究の対象として p 型 $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$ 混晶をサンプルに用いて研究を始めていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、RTD や QCL で困難な数 20THz 程度周波数域での室温以上の温度における連続レーザ動作の実現のため、狭帯域のフォノン・光相互作用幅に着目して、半導体表面構造を用いた LO フォノンや LOPC モードに共鳴する界面分極電荷形成による電気双極子輻射と光学利得達成のための電磁誘起透明化制御を初めて達成し、またフォノン系界面ポラリトンによる導波路など素子構造まで展開して基盤技術開拓を進めることにある。この研究は、新薬開発や安全対策などの飛躍的進歩に貢献する THz 波レーザの小型・室温連続動作化に貢献する。

3. 研究の方法

GaAs, GaInP, GaN, AlN など半導体のバルクまたは薄膜結晶の表面に金属ストライプを蒸着したものと半導体表面をストライプ型のメサ構造にエッチング加工してメサ頂上部分に金属膜を蒸着したものを試料とした。赤外反射分光, ラマン散乱分光, 加熱による発光の観測を行った。赤外反射分光や全反射分光では反射ロスの観測を行った。理論解析では分極電荷による電気双極子形成を仮定した誘電関数のモデル関数を構築して、ラマン散乱スペクトル, 反射スペクトルの評価を行った。IPhP 解析では、新たに提案した誘電関数を用いてエネルギー分散を解析し、薄膜への閉込め状態を評価した。

LO フォノン系による電磁誘起透明化では、理論計算およびラマン分光スペクトル解析により検討を行った。材料では、一振動面に 2 つの LO フォノンモードをもつ $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$ (GaAs 基板上)を用い、これまで他の材料で Fano 効果が確認されやすいことが分かっている p 型薄膜を用いた。 $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$ では自然超格子が形成されることが分かっており、本試料においてもわずかに自然超格子が残っていることが分かったため、Fano の量子干渉に関する報告³⁾を参考にして 2 種 LO および 3 種 LO フォノンを考慮したラマン散乱や光吸収スペクトルの理論計算を行なった。

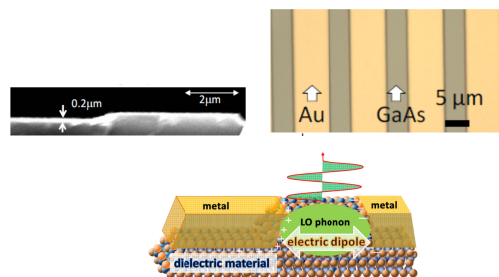


図1 金属/半導体メサストライプ試料構造例 Au(幅8 μm , 0.2 μm 厚)/GaAs(幅4 μm)メサ構造の断面 SEM 像(左), 表面光学顕微鏡像(右)と概念図中央下。

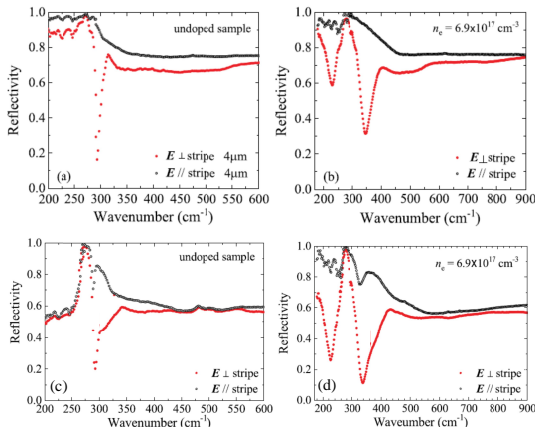


図 2 Au(8 μ m)/GaAs(4 μ m)ストライプ構造における赤外反射スペクトル (a), (c): u-GaAs, (b), (d): n-GaAs (a), (b): s 偏光, (c), (d): p 偏光, 入射角は 30°。

4. 研究成果

(1) 試料構造

図 1 にメサ構造 Au/GaAs ストライプ構造の断面 SEM 像と表面の光学顕微鏡像および試料構造と電気双極子形成の概念図を示す。この像では、幅 4 μ m 程度の GaAs ストライプのメサ構造が形成されていることが分かる。Au はメサ構造の底および斜面部分に蒸着されている。

(2) LO および LOPC モード共鳴赤外吸収 (5-[雑誌論文]1), 4)

GaAs 上に幅 8 μ m の Au を 12 μ m 周期で蒸着した構造について 45 度入射における光反射スペクトルを図 2 に示す。s 光, p 光ともにストライプに垂直な電場成分を持つもので大きな反射ロスが得られている。p 偏光ではストライプに垂直な電場成分は s 偏光の半分であるが, s 偏光と同等の大きさ以上の反射ロスが得られていること, この領域を除くと s 偏光と p 偏光で反射率に大きな差がないこと, さらに後に述べるように 6H-SiC 上に成長した AlN 薄膜においても同様の現象が見られ, この反射損失が空気から AlN への透過率がよい誘電率が 1 付近となる狭い波数範囲におけるワイヤグリッドの偏光選択というモデルでは説明できないことが分かる。n 型 GaAs に Au のストライプを貼った試料の反射スペクトルでは LOPC の高低両エネルギー

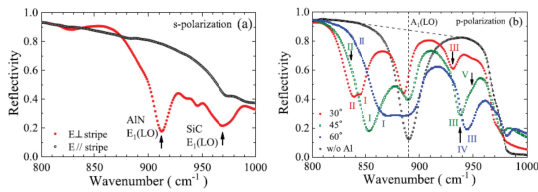


図 3 Al/AlN ストライプ構造における赤外反射スペクトル

(a) Al(6 μ m)/AlN(8 μ m), s 偏光で $E \perp$ stripe の条件におけるスペクトル, 入射角は 45°, (b) Al(3 μ m)/AlN(7 μ m) p 偏光で $E \perp$ stripe の条件におけるスペクトル, 入射角は図中に表記。

一分枝に一致するエネルギーにおいて反射損失ピークが観測された。この結果から LOPC モードに共鳴する光吸収が生じることが分かった。

図 3 に 6H-SiC 基板上に成長された AlN 薄膜 (480nm) の反射スペクトルを示す。s 偏光では $A_1(LO)$ 共鳴の 890 cm^{-1} で吸収ピークが観測される。この波数域は 6H-SiC の Reststrahlen バンドの内部であり, AlN と SiC の界面における反射率は高く, AlN の誘電率が 1 の付近となる波数で空気から AlN への界面で高い透過率が得られたとしても, この光は AlN と SiC 界面で強く反射され, 結局高い反射率が得られることになる。このため, 検出された反射ロス誘電率 1 付近での高い AlN への浸入率とワイヤグリッド偏光子における透過条件との両方が満足されることに依るわけではない。K-K 変換からも屈折率虚部に吸収を示すピークが得られた。またラマン散乱では Ti/GaN ストライプ構造で 2 つの向かい合う Ti/GaN 界面の両方を含む励起レーザスポットとする場合に我々が提案した誘電関数で新たに生じる実部の零点で新しいピークが得られることが分かった。これらのことからここで観測された反射率損失は金属/半導体ストライプ構造の界面分極電荷による電気双極子吸収であると結論付けられた。

(3) LOフォノン共鳴輻射

図 4 に GaAs 上へのメサストライプ構造 (図 1) 形成により 628K で 8.5THz にピークをもち全半値幅 13 cm^{-1} の輻射を観測した。構造の最適性と物理現象の探索を行い, フォノン散乱が発光強度を制限する状態にあり, GaAs ストライプ幅はサブマイクロメートルから数マイクロメートルがよく, 基板上に金属を蒸着したものよりは, メサ構造として金属を埋め込む形の方が発光強度が強いこと, メサの高さ

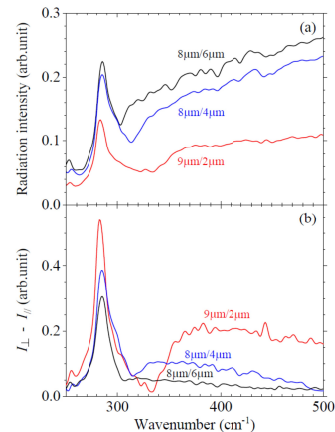


図 4 Au/GaAs-ストライプ構造の 628K における赤発光スペクトルの GaAs 幅依存性

(a)ではストライプ 1 本あたりのストライプに垂直な電場方向の発光強度成分 I_{\perp} について表示し, (b)では更にストライプに平行方向の強度成分との差 ($I_{\perp} - I_{//}$)を単位 GaAs ストライプ幅に対して表示している。

は400nm程度までであれば発光強度は増加しており今後数マイクロメートルまで検討してゆく必要ことが分かった。発光強度の絶対値はグラフアイトからの熱輻射と理論値を比較して検討され、オーダーとしては理想的な状態に近いことが分かった。また当初予測しなかった特異なスペクトル形状が 320cm^{-1} から高エネルギー側に観測された。詳細は不明であるが、回折現象が狭いストライプ幅で生じ、それが偏光方向に依存するために熱輻射の放出強度が長波長側で偏光方向に依存すること、SPhPによる熱輻射の吸収がLOフォノン近く(LOフォノンエネルギーより高エネルギー側)で起こることの二つの現象が重なるために生じていると考えられる。

この高温域のTHz輻射は電子系では困難と考えられ、フォノンを用いる意義が具体的に表れていると考えられる。

(3) 界面フォノンポラリトン閉込め (5-[雑誌論文]1))

金属/GaAsおよび金属/AlNストライプ構造における界面ポラリトンの形成状態およびエネルギー分散について考察した。金属/半導体ストライプ構造では、界面分極による電気双極子が生成されるため、金属のない半導体とは誘電関数が異なる。これによりIPhPのエネルギー分散が変化することを示した。金属/バルクGaAsストライプ構造ではIPhPの波動関数は金属/半導体界面付近の誘電関数が変化している部分のみならずGaAs内部にしみ込んでいるため通常バルクGaAsの誘電関数と電気双極子を考慮した誘電関数の平均的なものになっていることが分かった。一方金属/AlN(480nm)ストライプ構造では図3(b)のp偏光の反射スペクトルに特徴が示されている。ここではAlNの $A_1(\text{LO})$ モードにおける反射損失が起こっている。これはAlN膜上下界面における分極電荷による電気双極子吸収であると考えられる。その他の反射損失ピーク位置は光の入射角に依存しており、これらはIPhPによる吸収であると考えられる。これら全てのIPhPモードエネルギーは我々が提案した誘電関数を用いて初めて説明されることが分かった。6H-SiC基板の誘電関数を用いずにこれらのモードエネルギーを求めることができることから金属/AlN-IPhPやAlN-SPhPはAlN膜に閉じ込められていると考えられる。

薄膜へのSPhPを含むIPhPの閉じ込めは2次元結晶構造をもつグラフェンやBNを用いて研究がされているが、我々は通常の半導体薄膜を用いて閉じ込めがなされていることを変調された誘

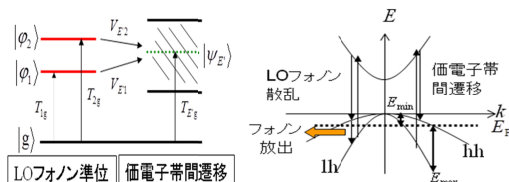


図5 フォノン系2離散準位と電子系連続準位の量子干渉の概念図

電関数モデルの提案により明らかにした。

(4) 電磁誘起透明化 (5-[雑誌論文]2)

電磁誘起透明化は2種LOフォノンの励起と電子系連続準位における遷移の量子干渉により生じる。概念図を図5に示す。我々はGaAs(001)基板上に成長された $p([\text{Zn}] = 1.8 \times 10^{18} \text{cm}^{-3})$ -Ga_{0.5}In_{0.5}Pのラマン散乱スペクトルを785nm励起により解析した。その結果、電子系連続準位を介して2種LOフォノンが干渉する大きさを表す変数を定義して定量的に解析することができた。また、本結晶における電子-フォノン結合強度はSiやGaAsに比べて大きいことが分かった。得られたパラメータを基に更に高密度における光吸収スペクトルを予測した。その結果を図6に示す。この結果から、正孔密度の 10^{19}cm^{-3} 台での制御がLOフォノンエネルギー領域における赤外光吸収スペクトルの制御を可能にすると考えられる。

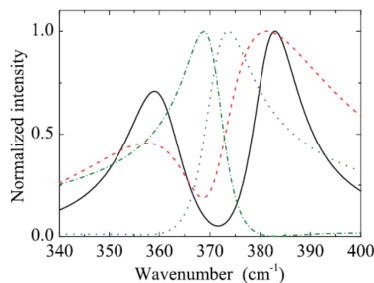


図6 ドーピング密度 $1.8 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ の試料に関する測定結果に基づいた高密度p型ドーブの光吸収スペクトル予測
破線： $1.5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ ，点線： $2.5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ ，1点鎖線： $3.5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ であり，吸収スペクトルを大きく変えることができる。

(5) 今後の課題

これまでは光反射や加熱による熱励起による現象を観測してきた。今後は光励起によるTHz放射や電流注入によるエネルギー供給を用いたエネルギー変換機構を実現する必要があり、これらの研究を行ってゆく。

参考文献

- 1) D. W. Berreman, Phys. Rev. **130**, 2193 (1963)
- 2) Y. Ishitani, J. Appl. Phys. **112**, 063431 (2012)
- 3) U. Fano, Phys. Rev. **124**, 1866 (1961)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計4件)

- 1) H. Sakamoto, E. Takeuchi, K. Yoshida, K. Morita, B. Ma, and Y. Ishitani, “Electric-dipole absorption resonating with longitudinal optical phonon-plasmon system and its effect on dispersion relations of interface phonon polariton modes in metal/semiconductor-stripe structures”, Journal of Physics D 51, 015105 (10pp.) (2017)
- 2) H. Sakamoto, B. Ma, K. Morita and Y. Ishitani, “Raman study of the quantum

interference of multiple discrete states and a continuum of states in the phonon energy region of semiconductors: examples of p-type $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$ films”, Journal of Physics D 49, 35107 (13pp.) (2016)

- 3) T. Kamijoh, B. Ma, K. Morita, and Y. Ishitani, ”Depth profile characterization technique of electron density in GaN films by infrared reflection spectra”, Japanese Journal of Applied Physics 55, 05FH02 (6pp.) (2016)
- 4) Y. Ishitani, K. Hatta, K. Morita, and B. Ma, “Dielectric absorption of s-polarized infrared light resonant to longitudinal optical phonon energy incident on lateral (0001)GaN/Ti stripe structures”, Journal of Physics D 48, 095103 (5pp.) (2015)

[学会発表](計 23 件)

国際学会

- 1) Y. Ishitani, “Optical absorption and emission in THz-mid infrared region of metal-semiconductor composites” Nano ST 2018, October 2018, Potsdam, Germany (Invited)
- 2) E. Takeuchi, H. Sakamoto, B. Ma, K. Morita, and Y. Ishitani, “Dielectric interaction of infrared light and electron-phonon coupling system in metal/semiconductor composites” Compound Semiconductor Week, 14 – 18 May 2017, Berlin Germany
- 3) Y. Ishitani, H. Sakamoto, B. Ma, and K. Morita, “Photonic function based on longitudinal optical phonon modes of semiconductors: infrared absorption control of composite materials and destructive quantum interferences”, EMN Optoelectronics, April 18-21 (2017), Victoria Canada (Invited)
- 4) Y. Ishitani, B. Ma, K. Oki, H. Sakamoto, and Ken Morita, “Phononic phenomenon in carrier dynamics and interaction with radiation in III-nitride materials”, Third Intensive Discussion on Crystal Growth of Nitride Semiconductors, 2017年1月16日-18日, 東北大学。(招待講演)
- 5) Y. Ishitani, H. Sakamoto, E. Takeuchi, B. Ma, and K. Morita “Phonon Engineering of Semiconductors in THz frequency region” International Conference on Science and Engineering, Yangon Myanmar, December 10-11, 2016 (key note Talk)
- 6) H. Sakamoto, B. Ma, K. Morita and Y. Ishitani, “Quantum interference of three LO modes in p-type $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$: Contribution of a trigonal phonon mode”, 43rd International Symposium on Compound Semiconductors, Toyama International Conference Center (Toyama Japan), June26-30 (2016)
- 7) T. Kamijoh, B. Ma, K. Morita, and Y. Ishitani "Depth profile characterization technique of electron density in GaN films by infrared reflection spectra", The 6th International Symposium on Growth of III-Nitrides (ISGN-6), November 8-13, 2015, Act City Hamamatsu, Hamamatsu, Japan (2015)
- 8) Y. Ishitani, K. Hatta, E. Takeuchi, B. Ma, and K. Morita, “Mid-infrared absorption at the LO phonon energy of metal/GaN-composite structure”, 11th International Symposium on Nitride Semiconductors, TUBP-185, Beijing, China, 30 Aug – 4 Sept. (2015)
- 9) Y. Ishitani, E. Takeuchi, B. Ma, and K. Morita, “Infrared absorption at the LO phonon energy of metal/semiconductor/metal composite materials”, 40th International Conference on Infrared and Millimeter and Terahertz Waves, FS-53, Hong-Kong, China, 23 Aug – 28 Aug. (2015)
- 10) H. Sakamoto, Y. Ishitani, K. Morita, B. Ma, “Interference of 2LO phonon and continuum inter-valence band transition in p-GaN film”, 40th International Conference on Infrared and Millimeter and Terahertz Waves, TS-51, Hong-Kong, China, 23 Aug – 28 Aug. (2015)

国内学会

- 1) 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「半導体/金属ストライプ構造における電気双極子形成に伴う誘電関数変化」第65回応用物理学会春季学術講演会, 早稲田大学 2018年3月17-20日
- 2) 青木伴普, 森田健, 石谷善博, 「GaAs/Au ストライプ構造を用いた LO フォノン共鳴の赤外光輻射」第65回応用物理学会春季学術講演会, 早稲田大学 2018年3月17-20日
- 3) 石谷善博, 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 「窒化物半導体における電子 フォノン相互作用と結晶性」第78回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場 2017年9月6日 (招待講演)
- 4) 坂本裕則, 森田健, 馬ベイ, 石谷善博, 「AIN 薄膜を用いた LO フォノン共鳴電気双極子形成および表面ポラリトン伝搬」第78回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場 2017年9月6日
- 5) 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「AIN/金属ストライプ構造における表面、界面ポラリトンモード観測」第9回ナノ構造・エピタキシャル成長講演会 2017. 7. 13 - 15 北海道大学、札幌
- 6) 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「AIN/金属ストライプ構造のラマン散乱スペクトルにおける A_1-E_1 選択則の崩れに関する検討」第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜(神奈川), 15a-F206-4, 2017年3月15日
- 7) 竹内映人, 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「金属/半導体複合構造における LO フォノン-プラズモン結合モード共鳴赤外光吸収とポラリトン損失」第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜(神奈

川), 15a-F206-3, 2017年3月15日

- 8) 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「p-Ga_{0.5}In_{0.5}Pにおける複数種LOフォノン系量子干渉効果および、フォノン系電磁誘起透明化のスペクトル計算」第5回結晶成長未来塾, 東京農工大学小金井キャンパス(東京), ポスター番号33, 2016年11月7日
- 9) 坂本裕則 z 馬ベイ, 森田健, 石谷善博 「ラマン散乱スペクトルにおけるフォノ干渉を用いた窒化物半導体の正孔濃度評価モデルの検討」Tu-1 第8回窒化物半導体結晶成長講演会, 京都大学, 2016年5月9-10日
- 10) 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「P型Ga_{0.5}In_{0.5}Pにおける複数種LO準位と電子遷移系の量子干渉効果」2016年第63回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2016年3月19日-22日
- 11) 上條隆明, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「赤外反射分光によるGaN薄膜の電子特性深さ分解評価手法」2016年第63回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 2016年3月19日-22日
- 12) 坂本裕則, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博, 「LOフォノン-価電子帯間遷移の量子干渉におけるキャリア分布の影響」2015年第76回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 2015年9月13-16日
- 13) 上條隆明, 馬ベイ, 森田健, 石谷善博 「赤外反射分光によるGaNの電子密度深さ不均一性評価手法」, 2015年第7回窒化物半導体結晶成長講演会(プレ ISGN-6), 東北大学, 2015年5月7-8日

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1件)

名称: 「赤外光素子」
発明者: 石谷善博
権利者: 千葉大学
種類: 特許
番号: 特願 2016-144974
出願年月日: 2016.7.23
国内外の別: 国内

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等
<http://photonics.te.chiba-u.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石谷 善博 (YOSHIHIRO ISHITANI)
千葉大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 60291481

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

森田 健 (KEN MORITA)
千葉大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号: 30448344

馬 ベイ (BEI MA)
千葉大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号: 90718420