

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 20 日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390089

研究課題名(和文) 共鳴レーラー散乱抑制と光捕集効果を持った光アンテナとその中赤外光検出素子への応用

研究課題名(英文) Research on resonant Rayleigh scattering and optical antennas toward application to midinfrared photodetector

研究代表者

笠原 健一 (Kasahara, Kenichi)

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：70367994

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は光アンテナの電界増倍と半導体量子井戸中でのサブバンド間遷移を使って高速・高感度な中赤外の受光素子を実現することが目的である。そのために原子層堆積法を用いて実際の電界増倍度を測定する手法を新規に開発し、SiC基板表面の表面フォノンポラリトン信号を観測することで有効性を確認できた。光電界増大に伴う共鳴レーラー散乱増大と光吸収断面積の低下が懸念されたが、光検出器で想定している円形光スロットアンテナでは増倍度が～100で、問題は生じないことが分かった。次に実際にAlGaAs/GaAs素子の上に円形光スロットアンテナを形成し、サブバンド間遷移に起因する反射スペクトルを確認できた。

研究成果の概要(英文)：The aim of this research is to produce rapid response and high sensitivity mid-infrared detectors by combining the field enhancement effect of an optical antenna and intersubband transitions in quantum wells. Toward this end, we have developed a technique to know the actual distribution of electric field components vertical to substrate surfaces of optical antennas in the depth direction by means of atomic layer deposition. Actually, its effectiveness was demonstrated by observing surface phonon polariton signals arising from SiC surface. Resonant Rayleigh scattering deteriorating photon absorption cross-section turned out to be negligible with optical antennas having relatively small enhancements as was the case in our experiments. Next, optical circular slot antennas were formed on AlGaAs/GaAs devices, and reflection spectra originating from intersubband transitions of GaAs quantum wells could be confirmed using a micro FT-IR.

研究分野：光エレクトロニクス

キーワード：中赤外光 光検出器 光アンテナ 共鳴レーラー散乱

1. 研究開始当初の背景

本研究提案者はサブバンド間遷移を使った中赤外域 ($3\mu\text{m} \sim 30\mu\text{m}$) 量子カスケードレーザ (QCL) の高性能化を進めてきた。QCL は現在、排気ガス計測装置に搭載されるに至っているが、高速動作が可能な QCL の特徴はまだ十分に活かされていない。その原因の一つは中赤外域での高速・高感度な特性を有した検出素子が無いことにある。現在、市販されている HgCdTe 等を使った光検出素子は感度が低く、周波数帯域も実際的には $\sim 1\text{MHz}$ にすぎない。

中赤外域の光検出器としてはその他に半導体量子井戸中のサブバンド間遷移を使った多重量子井戸型光検出素子 (QWIP) が研究されていた。しかしながら、量子井戸層が薄いために光吸収効率は低く、それを補うために量子井戸の層数を増やすと、今度は励起された電子が進行方向にある量子井戸に落ち込み、応答速度が劣化するといった問題があった。QWIP の研究はこうしたことから停滞していたが、近年、活発に研究されている光アンテナを用いれば性能向上が見込めないかという事が本研究の動機であった。

光アンテナでは光捕集効果によって薄層でも十分な光吸収が期待できる。そのためには光アンテナの電界増倍効果がアンテナ直下でどのようになっているか理解する必要があるが、素子サイズが波長以下であり、金属と半導体を含むような想定する構造に対しては有限差分時間領域法 (FDTD) 等の電磁界解析は精度に欠け、限界があった。また、アンテナ近傍にある物質の光共鳴レーリ-散乱の断面積は入射電界の増大係数の 4 乗に比例し、光吸収断面積が 2 乗に比例するのに対して大きくなってしまふ。この事は必ずしも十分に認識されていなかった。したがって、光アンテナによる捕集効果はこうした事も考慮した設計が必要であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は二つから成る。一つは光アンテナ近傍の電界増強効果を実験的に求め、光吸収特性との関係を調べることである。もう一つは、こうした知見を基に光アンテナ近傍に GaAs 単一量子井戸層を近接させた構造を作製し、サブバンド間遷移を使って中赤外域で動作する高感度・高速な検出素子を実現することにある。

3. 研究の方法

(1) 光電界の増強度が基板方向にどのようになっているかを実験的に測定する方法として我々は原子層堆積法 (ALD: atomic layer deposition) を用いた方法を考案した。ALD を使えば Al_2O_3 等の誘電体の膜厚を nm オーダーの精度で制御して基板上に形成できる。その後、誘電体膜の上に光アンテナを作製するが、このような構造で誘電体膜の層厚を何種類か変えたものを用意する。そして、これらの構

造に対して基板表面から生ずる特有の信号強度を測定すれば、光アンテナによる電界増強度の深さ依存性が測定できる。本研究では先ず基板に水平方向の増強電界の分布が見れるか調べた。次に垂直方向の増強電界の分布が測定できるか調べた。量子井戸のサブバンド間遷移を用いた QWIP に光アンテナを適用するには、サブバンド間遷移が層に対して垂直方向の光電界に対して起こるので、垂直方向の電界特性を求めることが必要となる。

(2) 光アンテナを搭載した QWIP では最終的には電極をつけ、光電流を観測することになるが、本研究ではその前の段階として光アンテナ効果によって GaAs 量子井戸層内で実際に吸収が起こっているかを光反射スペクトルより調べた。

4. 研究成果

(1) 基板に水平方向の増強電界は、独自に考案したダンベル型スロットアンテナ (DSA) を用いて行った。本アンテナの共鳴波長はダンベル方向の長さで決まるが、線形状の通常のスロットアンテナに比べて電界をダンベルの中心に集中させることができ、その分、大きな電界増強が得られることが特徴である。DSA は $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Si}$ 上に作製した。Si 基板上に ALD で Al_2O_3 の厚さを 0、20、40、60nm と変えた構造を作り、その上にレジストを塗布した。そして電子線リソグラフィを用いてダンベル形となる部分にレジストを残した後、Au/Ti を全面に蒸着し、リフトオフ・プロセスによって素子を完成させた。アンテナの寸法は $L=2.5\mu\text{m}$ 、 $W=0.6\mu\text{m}$ 、 $G=0.1\mu\text{m}$ 、 $A=0.6\mu\text{m}$ とした。アンテナ全体はこのようなアンテナを 15×20 個、周期的に配列した構造からなる。アンテナ間の縦方向の間隔は $1\mu\text{m}$ 、横方向の間隔は $0.5\mu\text{m}$ とした (図 1)。

反射率測定には顕微 FT-IR を用いた。 Al_2O_3 の膜厚を変化させた時の反射率特性を図 2 に示す。縦軸の反射率はアンテナがある場合の反射率をアンテナがない場合 (Au) の反射率で割って規格化している。このアンテナの共鳴波長は Al_2O_3 が 0nm の時に現れており、 $\sim 12\mu\text{m}$ である。共鳴が起こることで中央部の電界が増大し、反射率は低下する。 $8 \sim 9.5\mu\text{m}$ に見ることができる反射率の増大は Si 基板に自然に形成された SiO_2 からのレストストラーレン反射の影響である。この領域では、 SiO_2 の

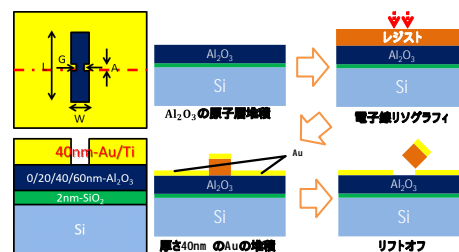


図 1 ダンベル型光アンテナの作製方法

屈折率がマイナスの値をとるため光は入り込むことなく全て反射される。この領域をレストラレンバンドと呼ぶ。レストラレン反射は基板に水平方向の電界に対して生じるので、この反射の大きさを観れば水平方向の電界の深さ依存性が把握できる。自然酸化膜である SiO_2 の膜厚は $\sim 2\text{nm}$ と考えている。反射信号は Al_2O_3 の厚さとともに減衰し、 60nm で完全に見えなくなっていることが分かる。これは、 Al_2O_3 の膜厚が 60nm と厚くなった位置では電界が減衰していることを意味している。

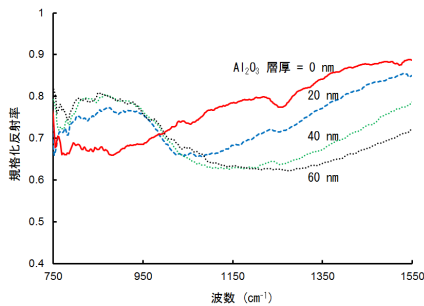


図2 Al_2O_3 の厚さを変えた時の反射率

FDTD による電界分布の計算も実験と併せて行ったが、光アンテナは金属 (Au/Ti) から成り、アンテナの最小寸法も $0.1\mu\text{m}$ と波長に比べて $1/100$ と小さいので計算は難しい。解析のためのメッシュを細かくすれば 3次元構造であることあって計算時間が増大してしまう。また実際のアレイ構造で FT-IR 測定する際には入射光は垂直方向から 20° の傾きで斜入射させているので FDTD 解析ではプロック境界条件を課して行うが、実験結果との一致度は悪い。結局のところはパラメータを調整して測定結果と辻褃を合わせてるのが実態であり、実験的に電界の増幅度を求める本手法は有効であることが分かった。

(2)次に基板に垂直方向の電界分布を調べた。そのために ALD で SiC 基板上に Al_2O_3 を堆積した。 Al_2O_3 の膜厚は 0、5、10、20nm と変化させた。アンテナは QWIP への適用を念頭に偏光依存性のない円形スロットアンテナとした。アンテナの直径 D は $6.0\mu\text{m}$ 、アンテナ間のピッチ p を $9.0\mu\text{m}$ とし、 10×10 のアレイ状に配置した(図 3)。 Al_2O_3 の膜厚を変化させた時の規格化反射率を図 4 に示す。 $800 \sim 900\text{cm}^{-1}$ では反射率がほぼ一定であり反射率が ~ 1 であり、 $900 \sim 980\text{cm}^{-1}$ で反射率が減少している。この領域では SiC の誘電率が負となっていてレストラレン信号が出現する。 Al_2O_3 が無い時に 935cm^{-1} に、また 20nm 積層されているとは 940cm^{-1} で反射率の低下が確認できるが、こ

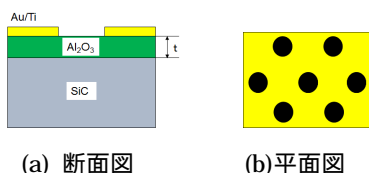


図3 円形スロットアンテナの構造

れは表面フォノンポラリトン (Surface Phonon Polariton: SPhP) が励起されたためである。SPhP が生成されるとその波数域での反射率は低下する。レストラレン信号、SPhP 信号共に Al_2O_3 の層厚が増すにしたがって小さくなっており、電界が減衰している事が分かる。

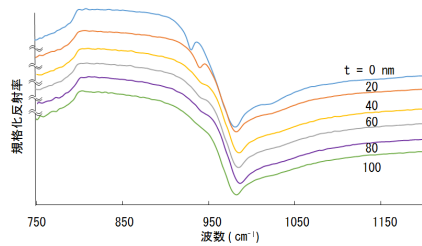


図4 Al_2O_3 の膜厚を変化させた時の反射率特性

$930, 940\text{cm}^{-1}$ で見られた反射率の低下が SPhP 信号であるか調べた。SPhP 信号の出現位置は $k_{\text{sphp}} D + \dots = m, n$ (k_{sphp} : 伝搬定数、 D : 直径、 \dots : 位相の変化、 m, n : n 次のベッセル関数の m 番目のゼロ点) から求められる。位相は $-\pi/2$ と仮定して計算した結果、反射率の落ち込みは SPhP 信号によるものである事が分かった。

次に実験と FDTD 解析による結果がどれくらい一致するか検討した。図 5 は FDTD でモニ

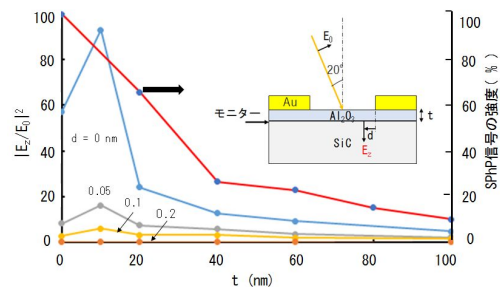


図5 FDTD による電界増強度の計算

ターをアンテナ下面から下向きに $0/10/20/40/60/100\text{nm}$ に設置し、その位置での $|Ez|^2$ (Ez は垂直方向の電界) と $|Ex|^2$ (Ex は水平方向の電界) に対する増強度を計算した結果である。電界が最も強くなるのはアンテナの縁であるのでその位置での深さ方向の増強度を計算している。電界増強度は水平方向よりも垂直の方が大きい。SiC 表面の $|Ez|^2$ は 57.1 倍であり Al_2O_3 膜厚が 10nm の時に最大で 92 倍となった。その後は膜厚の増大に伴い電界も減衰したが、実測とは一致していない。したがって、アンテナ直下の電界増強度を把握し、QWIP 中での量子井戸の最適位置を設計するにあたっては ALD を用いた本手法が有効であることが改めて確認できた。

次に光共鳴レーリ-散乱が SPhP 信号にどのような影響を及ぼすか、FT-IR で入射光の

強度を変えて測定を行った。散乱断面積は入射電界の増大係数の4乗に比例し、光吸収断面積が2乗に比例する。したがって入射強度を上げるとSPhP信号は相対的に弱まることになる。しかしながら、測定範囲内ではSPhP信号の大きさは変わらず、実験範囲内では影響は見られなかった。共鳴レーリー散乱の影響は入射光の強度とアンテナの増倍度が関係するが、FT-IRのようなランプからの光ではアンテナでそれが~100倍に増倍されたとしても共鳴レーリー散乱の問題は顕在化しないということになる。

(3)次に円形スロットアンテナを搭載したQWIPの実現に向けて素子を作製した。素子は分子線エピタキシーを用いてn-GaAs基板上に形成し、3周期のバリア層/n-GaAs量子井戸光吸収層/バリア層から成る。量子井戸の中心波長は8μmとなるようにするために、層厚は8.9nmとした。バリア層はAl_{0.4}Ga_{0.6}As(ドーピング濃度:2×10¹⁷cm⁻³)とした。それらの位置はALDから得られた電界増強度の深さ依存性から得られた知見を基に設計した。アンテナとしては図3と同様にAu/Tiに三角格子状の10×10の円形スロットアンテナ・アレイを形成した。Dは0.7~2.9μm、pは2.5~3.9μmとした。

また参照用にバリア層を量子井戸と同じn-GaAsとした素子も作製したが、比較用素子では量子井戸は形成されていないことになる。

量子井戸によるスペクトルの変化を確認するため、量子井戸があるQWIP構造で得られた反射スペクトルから量子井戸がない参照用素子でのスペクトルを引いて、差分をとった結果を図6に示す。図ではD=1.9μm、p=2.9μmの結果を示しているがピークは~1110cm⁻¹に現れ、量子井戸での光吸収が確認できた。p=2.9μmではp=2.5μm、3.9μmの場合と比べて強く表れたが、良く見ると分散的な特性を示していることが分かる。量子井戸によるスペクトルの変化はアンテナの直径で決まる共鳴波長が重なったときに強く現れるが、このような時にはファノ効果が起こることが知られている。測定で観測された反射率の差分特性はこれによって起こっている可能性がある。

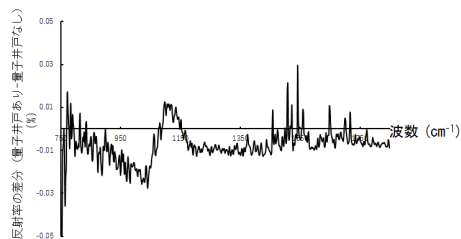


図6 反射率の差分

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

Yuhki Nishimura, Takahiro Kawano, Yuhta Kunichika, Kenichi Kasahara,

Toyonari Yaji, Naoki Ikeda, Hirota Ohsato, Hideki Miyazaki, Yoshimasa Sugimoto, "Observation of the enhancement of electric fields normal to the surface using mid-infrared slot antennas and an atomic layer deposition technique", Optics Communications, 査読有, Vol. 349, 2015, pp. 98-104 DOI: 10.1016/j.optcom.2015.03.063

〔学会発表〕(計15件)

Kenichi Kasahara, Probing Enhancement of an Electric Field Produced by an Optical Antenna Using Atomic Layer Deposition Technique, WCSM2017, Mar. 18. 2017, Bangkok (Thailand)

Junichi Miyata et al., Probing enhancement of an electric field perpendicular to an optical antenna surface using SiC surface phonon polaritons, 10th International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics (Metamaterials 2016), Sep. 21, 2016, Crete(Greece)

梅森 信行 他7名、4番目、光アンテナを搭載した量子井戸構造での反射率測定、第77回応用物理学会秋季学術講演会、2016年9月15日、朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

Yuhta Yamamoto et al., Measurement of electric fields enhanced by a circular slot antenna using SiC surface phonon polaritons, Photon 16, Sep. 6, 2016, Leeds(UK)

國近 祐太 他8名、5番目、SiC表面フォノンポラリトンによる光アンテナ電界増強度の測定、第63回応用物理学会春季学術講演会、2016年3月20日、東京工業大学大岡山キャンパス(東京都)

Junichi Miyata et al., Measurement of Electric-Field Distributions of Optical Slot Antennas Using Atomic-Layer Deposition, ANNIC (Applied Nanotechnology and Nanoscience International Conference) 2015, Nov. 5, 2015, Paris(France)

山本 悠人 他8名、5番目、円形スロットアンテナによる光増強効果の垂直方向依存性、第76回応用物理学会秋季学術講演会、2015年9月16日、名古屋国際会議場(愛知県・名古屋市)

宮田 純一 他7名、5番目、HfO₂/Al₂O₃上

に形成したダイポールアンテナからの反射スペクトルの観測、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月 16 日、名古屋国際会議場（愛知県・名古屋市）

Takahiro Kawano et al., Surface Phonon Polaritons-Using Perpendicular Electric Fields Monitoring in Midinfrared Circular Antennas Fabricated by Atomic Layer Deposition Method”, 9th International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics - Metamaterials 2015, Sep. 8, 2015, Oxford (UK)

Shun Mori et al., Reflection spectra of mid-infrared dumbbell-shaped slot antenna arrays with different inter-antenna distances, 13th international conference on near-field optics, nano-photonics, and related techniques (NF013), Sep. 3, 2014, Salt Lake City (USA)

國近 祐太 他 10 名、6 番目、中赤外光スロットアンテナによる光増強効果の垂直方向依存性（ ） 第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 11 日、東海大学（神奈川県・平塚市）

川野 貴裕 他 10 名、6 番目、中赤外光アンテナの干渉効果による反射率低減、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 11 日、東海大学（神奈川県・平塚市）

西村 悠希 他 9 名、6 番目、中赤外光スロットアンテナによるレストストラレーン反射の観測、平成 26 年度第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 17 日、北海道大学（北海道・札幌市）

西村 悠希 他 9 名、6 番目、ドルメン構造光アンテナにおける反射スペクトルの検討、平成 26 年度第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 17 日、北海道大学（北海道・札幌市）

Yuhki Nishimura et al., Electric field distribution perpendicular to the surface of mid-infrared antennas”, The Eighth International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics - Metamaterials 2014, Aug. 26, 2014, Copenhagen (Denmark)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

笠原 健一（KASAHARA, Kenichi）
立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：70367994

(2) 研究協力者

杉本 喜正（SUGIMOTO, Yoshimasa）
国立研究開発法人物質・材料研究機構・
主席研究員
研究者番号：60415784

尾崎 信彦（OZAKI, Nobuhiko）
和歌山大学システム工学部精密物質学
科・准教授
研究者番号：30344873