

令和元年9月9日現在

機関番号：74417

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K04987

研究課題名(和文) グラフェン表面プラズモンを用いたテラヘルツ広域帯電磁波発振器と増幅器の研究開発

研究課題名(英文) Research on broad band THz wave oscillator and amplifier with graphene surface plasmons

研究代表者

李 大治 (LI, DAZHI)

公益財団法人レーザー技術総合研究所・レーザーエネルギー研究チーム・研究員

研究者番号：00373209

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：金属の周期構造体と誘電体や電気新材料と呼ばれるグラフェンなどの組み合わせにより構成された複合放射構造体を考え、スミス・パーセル放射とは別に、強いテラヘルツ波発生を研究目標とした。誘電体を用いたグラフェンプラズモンポラリトンから放射電磁モードへの転換過程、プラズモンポラリトンと周期構造体表面電磁波とのカップリング効果、誘電体と金属周期スリットとの結合により発生した新たな放射物理現象などを研究したうえ、従来に考えていない新型な放射物理を基づいた複合放射構造体を製作し、既存の電子線発生装置を活用して検証実験を実施した。これらの成果を活用すると、小型化、高効率テラヘルツ波放射源の開発が期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、超広帯域にわたる波長可変な小型テラヘルツ波光源の開発を目指すグラフェン、半導体、金属微細構造、メタマテリアルを集成した独特な放射構造体を提案した。この放射機構には、励起されたプラズモンポラリトン、表面電磁モードからスミス・パーセルやチェレンコフ放射モードへの転換、モードの共鳴による放射増強、コヒーレントな放射過程など様々な物理メカニズムがあり、これらの物理を明らかにする上でも非常に意義深い。これらの研究結果を踏まえ、複合放射構造体を製作し、従来に考えていない電磁放射物理を検証した。これらの電磁放射メカニズムを活用すると、小型、効率の良い新型テラヘルツ波放射源開発が期待できる。

研究成果の概要(英文)：We researched on composite radiation structures consisting of metal periodical structures, dielectric and graphene, aiming at strong terahertz wave generation completely different from the Smith-Purcell radiation. The excitation of graphene surface plasmon polariton, conversion process from graphene plasmon polariton to radiation electromagnetic mode using dielectric plate, coupling effect between graphene plasmon polariton and periodic structure surface electromagnetic wave, and novel radiation physics phenomena from the combination of dielectric and metal slit array, are carefully studied. Based on the developed theory and simulation results, we fabricated a composited radiation structure to generate strong terahertz radiation that has not been considered before, and conducted principle-of-proof experiments using an existing electron beam setup. These results can be expected to develop compact and high efficiency terahertz radiation sources.

研究分野：テラヘルツ波工学

キーワード：テラヘルツ 新型放射物理 微細構造 複合型放射体

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ波工学は、新しい分野を開拓するものとして注目を集め、工業・医療・バイオ・農業・セキュリティ、超高速信号処理などさまざまな分野における応用が期待され、次世代に不可欠な科学技術と位置づけることができる。そのため、テラヘルツ波の応用に重要な役目を担うテラヘルツ波光源の研究開発は活発に展開されている。光源における可視光側からのアプローチや電波側からの発振器などの伝統的な技術を用いた、分子ガスレーザーや半導体レーザー、量子カスケードレーザー、ジャイロトロン、後進波管、共鳴トンネルダイオードなどの手法によりテラヘルツ波帯への開拓を活発化しているほか、光電新材料や金属微細構造技術を利用して新たなテラヘルツ波放射物理メカニズムの探索研究も精力的に進まれている。我々は、金属微細構造と誘電体や電磁気新材料と呼ばれるグラフェンなどの電磁特性を研究してきた。それらの特性を活用して複合型放射構造体を提案した。

2. 研究の目的

本研究では、電子線が駆動する、半導体やグラフェン素子、金属微細構造、メタマテリアルなどから構成された複合型の放射構造体により放出した電磁波放射の物理メカニズムを明らかにし、新型光源を開発する基礎研究を行う。

- (1) 誘電体とグラフェンとの結合により構成された平板型電磁波放射機構における、電子ビームと電磁波相互作用のメカニズムを探し出し、基盤理論を構築し、テラヘルツ放射可能性を理論的に検証する。
- (2) 得られた知見を誘電体基板と金属微細構造との組み合わせにより形成された機構に活用し、従来のスミス・パーセルと異なる新型放射物理を探索し、実験的に検証する。
- (3) 研究結果を踏まえ、金属周期構造とメタマテリアルにより構成された放射機構を研究し、テラヘルツ波放射新技術を模索する。これらの先行研究を行い、小型かつ高性能のテラヘルツ放射源開発の基盤理論と技術を確立する。

3. 研究の方法

- (1) 理論解析の手法で誘電体、グラフェン、金属微細構造により構成された放射体の電磁特性を研究する。これを基にして電磁界シミュレーションを行い、電子ビームによる電磁波放射の動作機構を検証する。
- (2) その上で、電磁波放射特性の媒質や微細構造の特性依存性を研究し、放射効率を向上させる実用的な方法を調べ、それらの放射の特徴を比較し、最適な機構を見出し、その利点を高める研究を行う。
- (3) それにより、既存の実験装置を活用して、電磁モード検証と放射実験を行い、理論との整合性を検討したうえ、放射物理を確認する。

4. 研究成果

(1) グラフェンによるテラヘルツ波発生

グラフェンは、炭素原子一個分の厚さしかない平面状の物質であり、優れた電氣的や機械的、光学的特性を持つため、基礎科学及び産業界に様々な応用が展開され、世界的に注目を集めている。特に、グラフェン表面に局在するプラズモンポラリトンと呼ばれる表面電磁波（Surface Plasmon Polaritons）が発見されて以来、外部ゲート電圧あるいは化学的ドーピングをチューニングすることにより、グラフェンベースの電気デバイスや光学素子などは、テラヘルツ領域に展開される可能になった。近年、グラフェン表面に電子線から誘起されたプラズモンポラリトンの導出方法が活発に研究されている。これは、波長可変な新型テラヘルツ波放射源開発に有望な手段と期待される。一般的に、プラズモンポラリトンは放射しなく、グラフェン表面に沿って伝搬することである。そのため、プラズモンポラリトンを放出可能な電磁波に変換する手法が重要な課題である。現在、微細構造を有する誘電体基板を加えてバンドフォールディング (band-folding) 効果を利用したアプローチが研究されているほうが、グラフェン導電率の非線形効果を利用した手法も注目されている。

我々は、前述の手法と異なる、グラフェンシートベースの平板構造体の両側に金属側壁を設置することによるプラズモンポラリトン導出の方法を提案した（図 1）。側壁構造に起きられた三次元電磁効果で、プラズモンポラリトン電磁モードが光円錐に近づけられ、その高調波が光円錐に落ち込み、放出可能となる。理論解析と数値計算によりこの発想を検討し、プラズモンポラリトンを放出可能な電磁波に変換する物理メカニズムを解明した。例として、基板の誘電率を $\epsilon_r = 11.7$ 、側壁間の幅を $w = 100 \mu\text{m}$ とし、繰り返し電子バンチで励起すると、電磁波が放出でき、その放射特性を図 2 に示した。横軸は電子の速度と真空中光速の比を表し、縦軸は励起された電磁波の周波数を示した。図 2 から、励起された基本波が放射できないが、第 2 高調波および第 3 高調波の一部が放射閾値を乗り越えて放射領域に落ち込み、放射できることになったとわかった。一例として、電子速度と光速の比が 0.35 の場合の電場の分布を図 3 に示した。放射周波数 1.17 THz を有する第 2 高調波が、誘電体領域内に 25.7 度で放射する様子を示した。これにより、グラフェン表面プラズモンモードの高調波が放出できることが検証された。このアプローチはグラフェンベースのテラヘルツ放射デバイスに応用が期待できる。

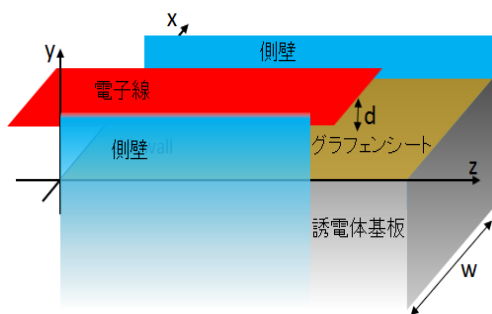


図1 金属側壁付きグラフェンベース放射機構解析モデル。

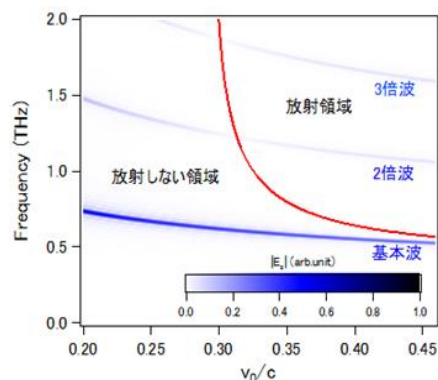


図2 表面プラズモン基本波、第2および第3高調波の電子エネルギー依存性。

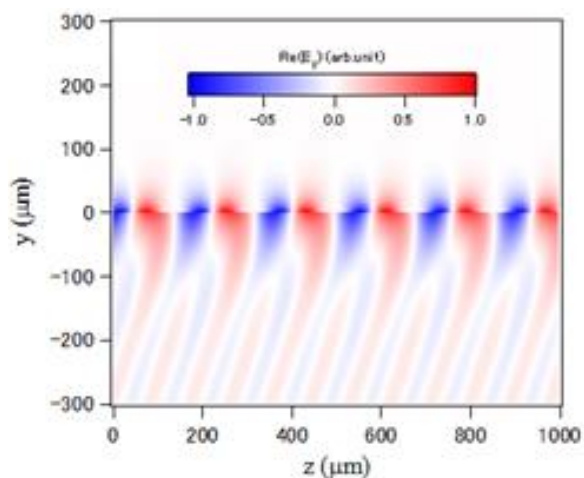


図3 誘電体中に2次高調波放出様子。

(2) 複合放射構造体

金属の周期構造体を誘電体上に形成すると、スミス・パーセル放射とは別に、誘電体中に強いテラヘルツ波が放射されることを理論的に予測した(図4)。この放射は、単一波長で、指向性が良く、従来のスミス・パーセル放射より数百倍高強度と考えられるため、高効率テラヘルツ波光源として大きく期待できそうである。理論・シミュレーションの結果を踏まえ、誘電体と金属周期構造からなる複合放射構造体を製作し、既存の電子線発生装置を利用して電子バンチとの相互作用で電磁放射が励起されることを実験的に検証した。

複合放射構造体における構築した電磁方程式を基にして様々なパラメータを用いて大量な理論計算を行った。既存電子線装置の性能、放射構造体製作の難易度及び検出器感度の帯域を総合的に検討すると、金属スリットの周期長 0.2 mm、溝幅 0.1 mm、深さ 0.4 mm をそれぞれ選出し、基板の材料をシリコンとすることを決めた。これらのパラメータにより計算した、新型電磁放射原理を表した電磁モード分散特性を図5に示す。真空中の光とシリコン媒質内の光をそれぞれ表した点線の間、実線で描いた二つの電磁モードが見える。これらの電磁モードは真空中に放射しない、シリコン媒質に放射するという特徴を持つ、従来に考えられなかった固有電磁モードである。エネルギー1 MeV 電子線を表す黒い直線は二つの電磁モード曲線とも交わり、交点の所に共鳴放射が引き起こされ、新型電磁波放射が得られる。一般的に共鳴点と呼ばれるその交点により、放射の周波数と波数が導出でき、放射角度も決められる。今回はエネルギー1 MeV をターゲットとして放射構造体を設計する。理論計算によると、二つの放射電磁波ともシリコン基板中に電子バンチ走行方向により 71.9 度の放射角度で放射することが明らかになった。

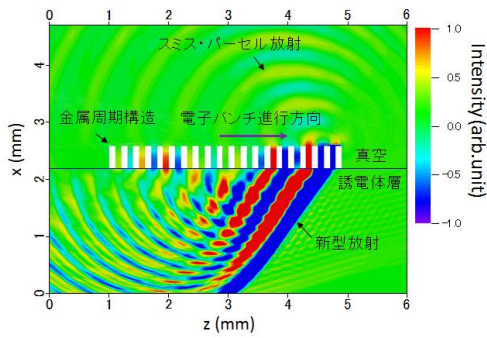


図 4 誘電体基板上に形成された金属周期構造体からの電磁放射。真空域に放出されるスミス・パーセル放射と誘電体域に放射される新型電磁放射。

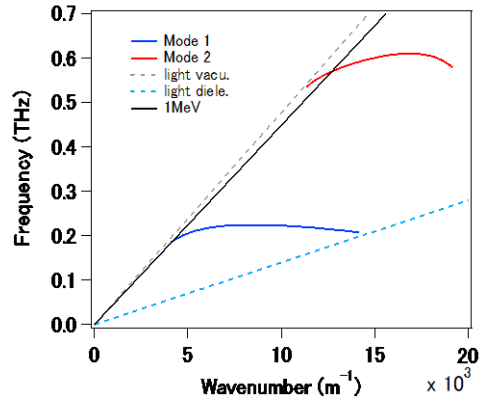


図 5 複合放射構造体における電磁モードの分散特性。この帯域に二つの固有電磁モードが存在し、電子線により励起されると新型電磁波放射になる。

新型放射は金属周期スリットとシリコンとの境界面で生じると、前述の放射角度でシリコン基板中に伝搬する。放射電磁波はシリコン基板と真空との境界面に当たると、スネルの法則に従い、屈折の効果で真空中に伝搬し始まる。真空中の伝搬角度はスネルの法則に従い、電磁波の入射角度を調整すれば希望の角度で伝搬することが実現できる。電子バンチを走行させる既存の真空チャンバーの構造を考えると、シリコン基板からの放射電磁波は電子線走行方向、即ち金属周期スリットの表面と垂直方向に伝搬することを実行する。そうすると、発生した新型電磁波は真空チャンバーの石英窓を貫通し、空気中にある距離で伝搬して検出器に到達する。これらの考えにより、シリコン基板は図 6 に示すようなプリズム形を採用し、屈折率や入射角度などにより計算すると、プリズムの角度は 25.3 度と考えられた。

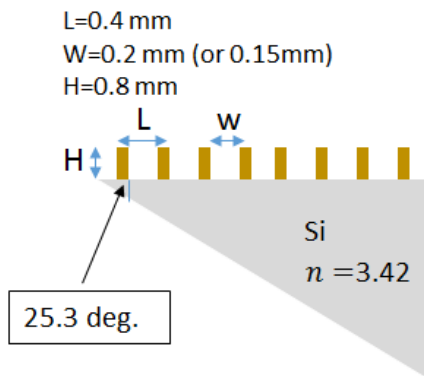


図 6 複合放射構造体概念図。電磁放射を導出するために、シリコン基板をプリズムの形とした。

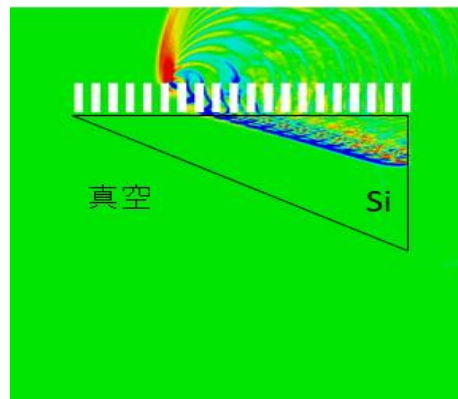


図 7 金属スリットとシリコン境界面で新型放射生成。

金属周期スリットの寸法、シリコン基板の形などの設計パラメータを検証するために、電磁界ソフトを用いてシミュレーションを行った。このシミュレーションには、電子バンチにより新型電磁波発生、基板中の電磁波伝搬、境界面で屈折現象、真空中の電磁波伝搬などの物理過程が含まれる。解析モデルとして、エネルギー 1 MeV、幅 100 fs の電子バンチを金属周期スリット表面の近傍に走行させる。その際に、金属スリットとシリコンとの境界面で生じた新型放射の様子を図 7 に示す。これにより放射角度は設計値と一致することを確認した。放射電磁波はシリコンプリズムと真空との境界面で回折されることが見え、そのあと、設計値の通りに、電磁波は図 8 に示すように金属周期スリットの表面と垂直方向に真空中に伝搬することを確認した。

変形しにくいことや加工しやすことなどの考えにより、金属周期スリットの材料はステンレス鋼を選択した。厚さ 0.4 mm、長さ幅それぞれ 1 cm のステンレス鋼板に、レーザー照射の手法で幅 0.1 mm の溝 40 個を周期的に刻んで周期スリットを製作する。レーザービームサイズやレーザー照射による熱効果などの影響で、精度の良いものの作成が難しい。とりあえず、サン

プルを十数個製作しておき、顕微鏡を利用して一つずつ加工精度や表面の凹凸などを確認する。その中に品質の良いものを選出して複合構造体作成に使うと考えられた。また、設計寸法に従い、シリコンプリズムを加工した。電磁波の減衰を低減するため、高抵抗シリコンを選んだ。そのうえ、金属ホルターを製作し、金属周期スリットをシリコンプリズムの表面に固定して複合放射構造体を完成した。

フェムト秒レーザーパルスを陰極に照射してから発生した電子バンチは高強度マイクロ波により加速され、真空チャンバーに通過する。電子バンチの幅は励起レーザーパルス長と同じ(100 fs 程度)、エネルギーは1~3 MeV の範囲で可変である。シングルバンチには1 pC の電荷量が含まれる。放射構造体は真空チャンバー中に設置するために、調整機能を有する取り付け装置を制作した。これにより、実験中でも放射体を遠隔操作により4次元(位置と角度)で調整できる。そうすると、電子バンチは金属スリット表面の近傍を通過することが確保できる。Insb ボロメータを検出器として計測系を構成した。検出器はオシロスコープに繋がり、放射信号を読み出す。ボロメータは2段階冷却が必要となる。液体窒素により77 K まで検出器を冷却してから液体ヘリウムを注ぎ、4 K 程度まで冷却する。そうすると、感度の高い検出器になり、低周波数帯域にも効率に計測できる。実験装置写真を図9に示した。

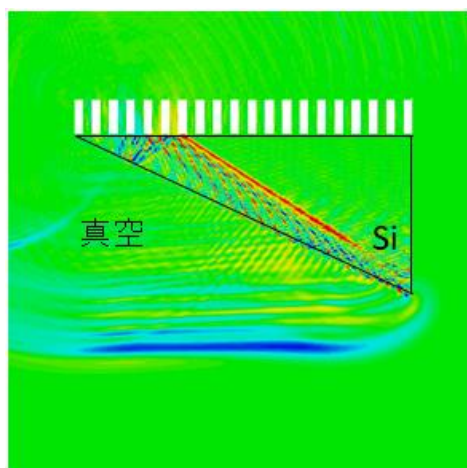


図8 基板から真空中に伝搬。

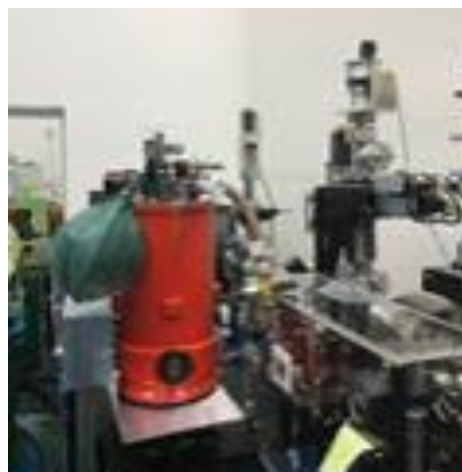


図9 実験装置写真。

様々な電子バンチのパラメータで計測を行った。例として、図10に示すような放射信号が得られた。赤い線は電子エネルギー3 MeV の条件で計測した信号である。入射レーザーを遮断して電子バンチを発生しない場合は黒い線で表すような信号を読み出し、これはノイズである。比べると、赤い線は電磁放射信号と考えられる。また、放射方向は設計値とほぼ一緒と考えられ、これは理論で予測した新型放射であると確認した。

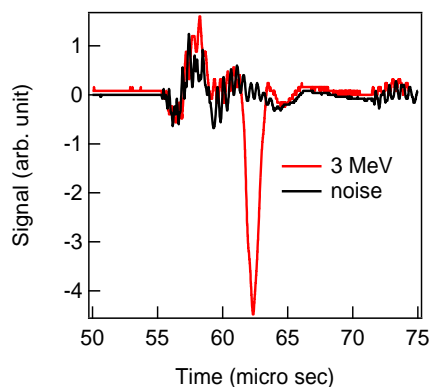


図10 複合放射構造体による新型電磁放射発生。赤い線は放射信号を表し、黒い線はノイズである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 9 件)

- [1] [Dazhi Li](#), [Makoto Nakajima](#), Masahiko Tani, Jinfeng Yang, Hideaki Kitahara, [Masaki Hashida](#), Makoto Asakawa, Wenxin Liu, Yanyu Wei, Ziqiang Yang, “Terahertz Radiation from Combined Metallic Slit Arrays”, Scientific Reports 9, 6804 (2019)
- [2] [D. Li](#), T. N. K. Phan, K. Kato, [M. Nakajima](#), M. R. Asakawa, [M. Hashida](#), M. Tani, W. Liu, Y. Wei, “Development of Terahertz Radiation Source with Slit-Array Structure”, IEEE Xplore, DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2018.8510392
- [3] Kazuaki Mori, [Masaki Hashida](#), Takeshi Nagashima, [Dazhi Li](#), Kensuke Teramoto, Yoshihide Nakamiya, Shunsuke Inoue, and Shuji Sakabe, “Increased energy of THz waves from a cluster plasma by optimizing laser pulse duration”, AIP Advances 9, 01535 (2019)

- [4] Shuanzhu Fang, Jin Xu, Xuebing Jiang, Xia Lei, Pengcheng Yin, Quan Yang, Tingting Guo, Gangxiong Wu, Qian Li, Chong Ding, Ruichao Yang, Guoqing Zhao, Hairong Yin, Lingna Yue, Dazhi Li, Wenxiang Wang, Yanyu Wei, “0.65 THz Sheet Beam Traveling-wave Tube Based upon Truncated Sine Waveguide”, IEEE Xplore, DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2018.8510521
- [5] Pengcheng Yin, Jin Xu, Shuanzhu Fang, Ningjie Shi, Guoqing Zhao, Wenxiang Wang, Hairong Yin, Linna Yue, Yanyu Wei, Dazhi Li, Luqi Zhang, “0.22THz Ridged Sine Waveguide BWO and Sheet Beam Electron Optical System”, IEEE Xplore, DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2018.8509851
- [6] D. Li, Y. Wang, M. Nakajima, M. Tani, M. Hashida, M. R. Asakawa, Y. Wei, and S. Miyamoto, “Coherent radiation at the fundamental frequency by a Smith-Purcell free-electron laser with dielectric substrate”, Appl. Phys. Lett. 110, 151108 (2017)
- [7] Kazuaki Mori, Kazuaki Mori, Masaki Hashida, Takeshi Nagashima, Dazhi Li, Kensuke Teramoto, Yoshihide Nakamiya, Shunsuke Inoue, and Shuji Sakabe, “Directional linearly polarized terahertz emission from argon clusters irradiated by noncollinear double-pulse beams”, APPLIED PHYSICS LETTERS, 111, 241107 (2017)
- [8] D. Li, Y. Wang, M. Nakajima, M. Hashida, Y. Wei, S. Miyamoto, M. Tani, “Terahertz Radiation from Graphene Surface Plasmon Polaritons”, IEEE Xplore, DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2016.7758931
- [9] D. Li, M. Nakajima, M. Hashida, Y. Wei, S. Miyamoto, “Harmonics radiation of graphene surface plasmon polaritons in terahertz regime”, Physics letters A 380, 2181 (2016)
- [学会発表] (計 8 件)
- [1] D. Li, K. Sugimoto, S. Miyake, M. R. Asakawa, K. Kato, T. N. K. Phan, M. Nakajima, M. Hashida, M. Tani, W. Liu, and Y. Wei, “Research on Terahertz Radiation from Femtosecond Electron Bunches”, The 11th Asia-Pacific Laser Symposium (2018)
- [2] 李大治, 中嶋誠, 楊金峰, 谷正彦, “高効率テラヘルツ電磁波放射体研究”, 応用物理学会秋季学術講演会 (2018)
- [3] Phan ThanhNhat Khoa, Dazhi Li, Kosaku Kato, Masahiko Tani, Masashi Yoshimura, Makoto Nakajima, “Research on the Radiative Eigenmodes in Terahertz Wave Region from Metallic Slit Array”, 応用物理学会春季学術講演会 (2018)
- [4] 李大治, 中嶋誠, 橋田昌樹, 谷正彦, 浅川 誠, “複合グレーティングによる電磁モード分散特性解析”, 応用物理学会秋季講演会 (2017)
- [5] 李大治, 中嶋誠, 橋田昌樹, 谷正彦, 浅川 誠, “新型放射を用いたスミス・パーセル自由電子レーザー”, レーザー学会学術講演会 (2018)
- [6] 李大治, 中嶋誠, 橋田昌樹, “グラフェン表面プラズモンポラリトンによる電磁波放射”, 応用物理学会春季学術講演会 (2017)
- [7] Dazhi Li, Makoto Nakajima, Masaki Hashida, Masahiko Tani, Makoto Asakawa, “Coherent radiation in terahertz regime from a composite grating”, MTSA2017-OptoX NANO (2017)
- [8] Phan ThanhNhat Khoa, Dazhi Li, Kosaku Kato, Masahiko Tani, Masashi Yoshimura, Makoto Nakajima, “Research on the Radiative Eigenmodes in Terahertz Wave Region from Metallic Slit Array”, 応用物理学会春季学術講演会 (2018)

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：中嶋 誠

ローマ字氏名：NAKAJIMA, makoto

所属研究機関名：大阪大学

部局名：レーザー科学研究所

職名：准教授

研究者番号 (8桁)：40361662

研究分担者氏名：橋田 昌樹

ローマ字氏名：HASHIDA, masaki

所属研究機関名：京都大学

部局名：化学研究所

職名：准教授

研究者番号 (8桁)：50291034

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。