

令和 3 年 5 月 13 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04980

研究課題名(和文) 低温成長GaAsにおける光吸収のプラズモニック増強とテラヘルツ波検出応用

研究課題名(英文) Plasmonic enhancement of photo-absorption in low-temperature-grown GaAs and its application to terahertz wave detection

研究代表者

角屋 豊 (Kadoya, Yutaka)

広島大学・先進理工系科学研究科(先)・教授

研究者番号：90263730

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究はテラヘルツ時間領域分光，特に1.5 μm 帯パルスレーザーを使用するシステムで使用される光伝導アンテナの高性能化を主目的とした．極低雑音性を有する低温成長GaAsにおいて，励起光の非線形吸収を金属ナノパターンにおけるプラズモン共鳴とファブリペロー共鳴で増強することでTHz波発生・検出感度を向上させる．基板側に分布ブラッグ反射器を組み込むことで，電子線露光法を用いた素子作製に対応し，かつ高増強度が得られるデバイス構造を明らかにした．また低温成長GaAsにおける線形，非線形吸収の定量化を行った．さらに低温成長GaAs光伝導アンテナにおける信号および雑音の素子パラメータ依存性を明らかにした．

研究成果の学術的意義や社会的意義

安定性，価格，小型化に優れたErドープファイバーレーザー駆動のテラヘルツ時間領域分光システムの高性能化が実現し，応用範囲が広がる．またファイバーを用いた可搬型のTHz波発生・検出素子が可能になり，極低温，強磁場等の特殊な環境下でのテラヘルツ時間領域分光が容易になる．また，プラズモニクス研究としては，半導体等の実用上重要な基板に設けたメタルナノパターンにおける近接場増強の理学と工学が進展する．一方，半導体光物性的には，低温成長GaAsにおける線形，非線形吸収が定量化され，この材料における非線形光学応答の物理的理解が進む．

研究成果の概要(英文)：We investigated the way of realizing high performance photoconductive antenna used in terahertz time-domain-spectroscopy based on the pulse laser working at 1.5 micrometer. In the photoconductive antennas made on low-temperature-grown GaAs which has very low noise characteristics, we enhance the nonlinear photo-absorption by utilizing surface plasmon resonance in nanometer-scale metal patterns and the Fabry-Perot resonance and eventually improve the efficiency of THz generation and sensitivity of THz detection. We clarified that by adopting a distributed Bragg reflector in the substrate, a large enhancement of light intensity can be realized in the device which can be fabricated based on the electron-beam lithography. In addition, we quantified the linear and nonlinear absorption coefficients in low-temperature-grown GaAs at 1.5 micrometer. Moreover, we clarified the device parameter dependence of the signal and noise in the photoconductive antenna made on low-temperature-grown GaAs.

研究分野：光デバイス工学

キーワード：テラヘルツ 光伝導アンテナ 低温成長GaAs プラズモニクス 非線形吸収

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

広帯域性と時間分解性という特徴を有するテラヘルツ時間領域分光 (THz-TDS) は、物性研究、特にサブピコ秒ダイナミクス研究の強力な道具となっている。またスペckルが無い等の利点があり、主に医薬品の研究開発や製品検査等を中心に着実に実用化が進んでいる。THz-TDS においては、フェムト秒パルス光を変換素子に照射することで THz 波を発生・検出するが、ほとんどの実用システムでは光伝導アンテナが変換素子として用いられている。パルスレーザーとしては、実用的なシステムにおいては Er ドープファイバーレーザー (EDFL) の利用が広がっており、小型・安定・低価格だけでなく、THz 波発生・検出器の可動化や極低温・強磁場等の特殊空間での THz 波発生・検出が容易という大きな利点があり、学術的研究にも大変有用である。

THz 波検出に用いる光伝導膜としては、広帯域、高時間分解能のための極短キャリア寿命と、低雑音のための高抵抗性が求められるが、EDFL 用に用いられている低温成長 (LTG) -InGaAs を用いたアンテナは必ずしも十分な特性を有しない。本研究では LTG-GaAs に注目した。低温成長 GaAs はバンドギャップが EDFL 光子の 2 倍程度であるため励起効率が低いが、超短キャリア寿命と極低雑音両立が可能という利点がある。従って、励起効率を高めることができれば、有用なデバイスになり得る。励起効率向上のため非線形光吸収を用いる。一般には非線形光吸収は微弱だが、光伝導アンテナでは、フェムト秒パルスによる時間的高密度励起である事に加えて、低温成長時に取り込まれる過剰ヒ素が禁制帯内に作る準位がほぼ 1 光子共鳴位置にあるため、非線形遷移の確率が上がる。本研究代表者は既に強集光による効率向上を報告していたが、光学調整に敏感すぎることを改善や、さらなる高効率化が求められていた。またこのデバイスの 1.5 μm 帯励起での動作機構は良くわかっていなかった。例えば信号は励起光パワーの 2 乗に比例せず、中パワー域に飽和傾向がある。この飽和現象は高性能化の妨げになるため、その原因を明らかにする必要があった。

一方、金属の光学応答を扱うプラズモニクスの研究も近年国内外で極めて盛んである。デバイス応用としては輻射制御、熱光変換、発光ダイオードや太陽光発電の高効率化などが精力的に研究されているが、これらは主として線形光学過程の改変である。一方、表面プラズモンの重要な性質の 1 つは金属近傍で増大する近接場であり、特に非線形応答の増強に有効である。本研究では上記の非線形吸収の向上に表面プラズモンによる近接場光増強を用いた。メタルパターンとしては、局在プラズモン共鳴を用いる小判型と、伝搬型プラズモン共鳴を用いるグレーティング型が考えられるが、いずれの場合も半導体中の光増強が生じることなどがシミュレーションで確認できていた。また、代表者は半導体上のメタルグレーティングにおける異常透過に関する理論研究も行っていた。

2. 研究の目的

本研究では、THz-TDS に用いられる THz 波発生・検出素子である光伝導アンテナ、特に波長 1.5 μm 帯のパルスレーザーに適した光伝導アンテナの高性能化を行う。特に、研究代表者らが提案している、LTG-GaAs 光伝導アンテナにおける非線形光吸収を用いる方法において、金属ナノパターンにおける表面プラズモン近接場を用いて吸収を増強することで、さらなる性能向上を行うとともに、このデバイス物理や最適設計を明らかにする。本研究では特に高性能化が切望され、LTG-GaAs の低雑音性が鍵となる検出用アンテナに重点を置く。

3. 研究の方法

研究目的を達成するため、数値シミュレーションを用いて、プラズモニック構造で近接場が増強される条件の物理的解釈と、光伝導アンテナデバイスにおける光増強のための最適化設計を行う。また結晶成長と微細加工技術等を用いた素子作製を行うとともに、EDFL およびチタンサファイアレーザー等を用いた THz 波検出測定を含む種々のデバイス評価を行った。

4. 研究成果

(1) メタルグレーティングを用いた光伝導アンテナの性能向上

研究開始時点では図 1 に示すような LTG-GaAs 上にメタルパターンを形成した構造を想定していた。メタルパターンとして小判型パターンとグレーティングのいずれを採用するかを決めていなかったため、最初に両者における増強のシミュレーションを徹底的に行った。この結果、両者の最大増強度は同程度となりえるものの、小判型ではパターンの極近傍でのみ増強するのに対し、グレーティングは広い範囲での増強が可能であることが明らかになったため、後者を採用することとした。高い増強度が得られるグレーティングは厚さ、およびスリット幅がそれぞれ 300 nm、および 80 nm 程度とアスペクト比の大きな構造になることから、収束イオンビーム (FIB) によるグレーティング作製を試みた。作製条件を詳細に検討したが、大学の設備では、スリット形状を再現性良く制御することが困難であること、特にスリット部にメタル残渣が起りえるという致命的な欠点があることが判明した。そこで 100 nm 以下の薄い金属を用いて同様の光増強を得る構造を探索した。金属が薄い場合、スリット内でのファブリペロー共鳴が実現できないことから、基板側に分布ブラッグ (DBR) 反射器を導入した図 2 の構造での最適化を行った。図 3 に DBR 層数 45、低温成長 GaAs 層 170 nm、グレーティング周期および厚さが 200 nm および 50 nm とした場合の増強度のスペクトルを示す。スリット幅については、狭いほど最大増強度は高

くなるが、素子作製も考慮し 80 nm としている。増強度はスリット中央の界面下 10 nm の値である。また、素子作製における誤差なども考慮した種々の検討を行い、誤差が生じた場合も、ある程度の補正が可能であることが明らかになった。

この設計に基づき、EB 露光を用いたグレーティング作製の最適化を進めた。最終年度のコロナウイルス感染症まん延と EB 露光装置の故障により半年近い遅れが生じたため光伝導アンテナでの実証には至らなかったが、図 4 に示すように、ほぼ所望のグレーティングを作製できることが明らかになった。今後、実際に光伝導アンテナを作製し、THz 波検出感度の向上を実証する。

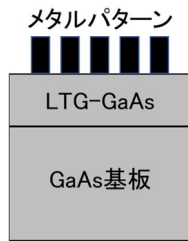


図 1：素子構造断面（当初案）

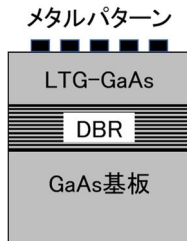


図 2：素子構造断面（修正案）

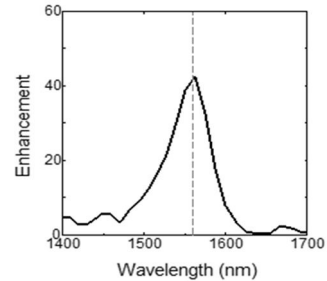


図 3：増強度スペクトル（シミュレーション）

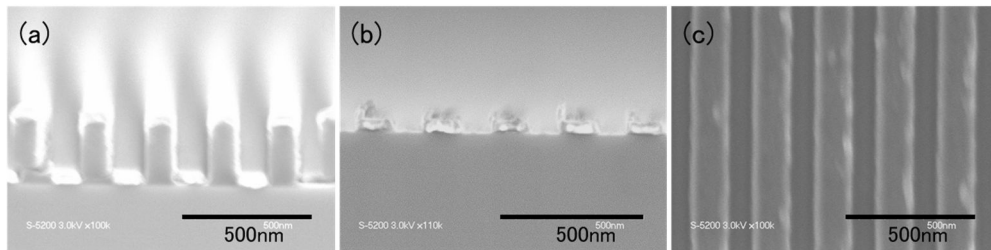


図 4：作製したグレーティングの SEM 像。(a)リフトオフ前（断面）.(b)リフトオフ後（断面）.(c)リフトオフ後（上面）.

(2) 低温成長 GaAs における非線形吸収の定量測定

LTG-GaAs における非線形吸収については、光伝導アンテナにおける光電流の形で観測されていたが、非線形に増加する電流に加えて、電流が飽和（または線形よりも減少）する現象が観測されていた。後者は電極を含む光励起キャリアの輸送に起因する可能性があるため、まずは純粋に吸収を測定することが重要である。薄膜材料の吸収測定となるため、基板除去やエタロン効果の排除などの工夫を行った。具体的には、薄膜を基板から剥離し、片面に金属ミラーを設けて反射配置で透過率を測定する方法を採用した。また、表面には低反射コーティングを施してエタロン効果を除去した。測定結果では上記の飽和現象が観測されず、予想通り飽和現象は吸収ではなく、キャリア輸送に起因することが明らかになった。また測定結果とモデル計算を比較して、線形吸収係数、および非線形吸収係数を算出した。図 5 にそれぞれの LTG-GaAs 成長温度およびアニール温度依存性を示す。線形吸収、非線形吸収ともに成長温度と共に低下、アニール温度と共に上昇する傾向が観測された。成長温度依存性は低温成長時の過剰ヒ素量との相関と考えられるが、アニール温度依存性は、中間準位密度との対応が合わず、理論的な研究が必要と考えられる (Kadoya, Asia-Pacific Laser Symposium, 2018)。また、ポンププローブ測定により、非線形応答の時定数がパルス幅 (<100 fs) と同程度であることから、非線形吸収は 2 段階励起ではなく 2 光子吸収である可能性が高いことが明らかになった。

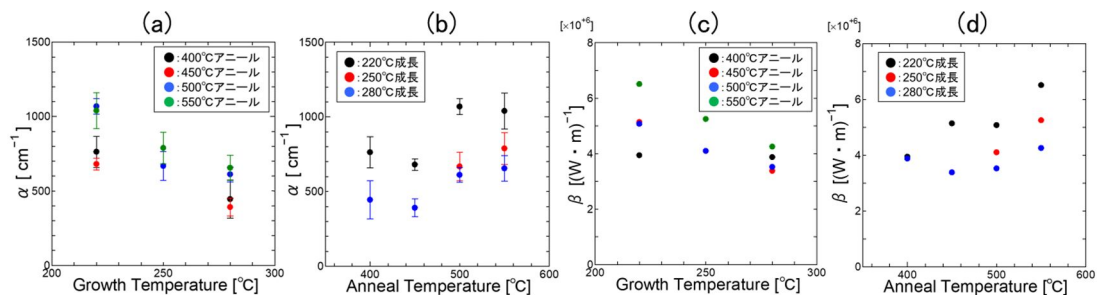


図 5：LTG-GaAs における線形(a,b)および非線形（2次）(c,d) 吸収係数。

(3) 光伝導アンテナを用いた THz 波検出における信号および雑音

一般に検出器の最も重要な性能指標は信号・雑音 (SN) 比であるが, 光伝導アンテナによる THz 時間領域測定における SN に関しては, 実験的, 定量的な研究がほとんどなされていなかった. そこで本研究では, まず THz 波の発生やアラインメントに全く依存しない, 雑音の定量化と回路および材料 (LTG-GaAs) 作製条件の対応を系統的に明らかにした. 図 6 に種々の条件で作製したアンテナにおける雑音スペクトルの実験結果および回路モデルに基づく予測を示す. 実験は, 実際に THz 波の観測を行う場合と同じパルス光励起 20 mW の場合である. これらの分析により, 比較的高い周波数 (100 kHz) で変調した場合の雑音はアンテナにおける熱雑音が支配的であり, パルス光励起下の直流抵抗値で良く説明できること, 低周波 (kHz) で変調した場合は $1/f$ 雑音が重畳されること, また $1/f$ 雑音源が半導体と電極の接触にあり, 電極の直流接触抵抗と強い相関があることなどが明らかになった (Nitta and Kadoya, J. Infrared, Milli. Terahertz waves, 2019). 一方, 信号強度に関しては, 入射 THz 波の適切な定量化が容易でないため, 相対比較にならざるを得ないが, 基本的には図 7 に例を示すように, 信号強度はアンテナのパルス光励起状態での直流コンダクタンスと強い相関があることが明らかになった. またこのコンダクタンスが低い例では, コンダクタンスが電極金属と半導体の接触抵抗に支配されていると考えられることも明らかになった (Kadoya, SPIE Defense + Commercial Sensing, 2020).

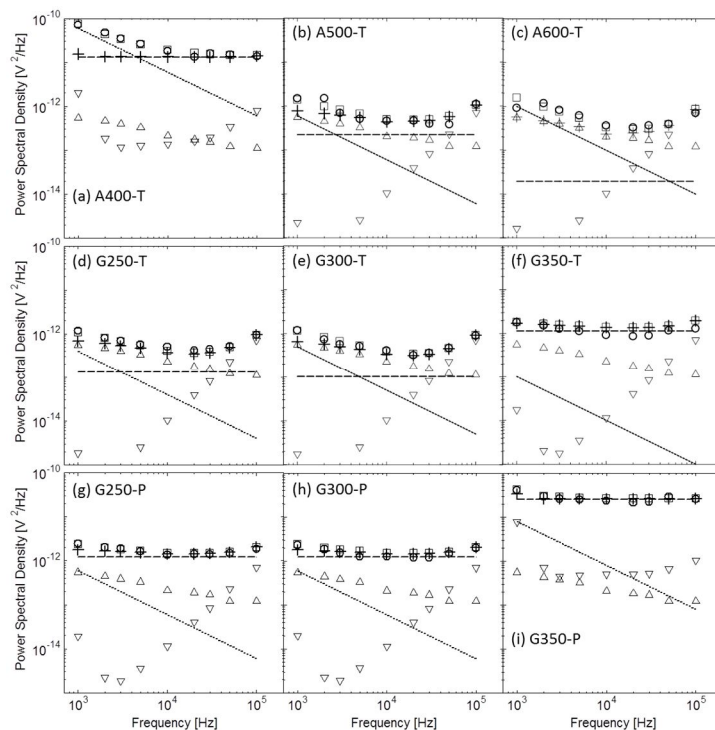


図 6 : 種々の成長温度 (T_G) とアニール温度 (T_A) で作製した TLG-GaAs 光伝導アンテナの雑音スペクトル. パルス光励起は 20 mW. (a) $T_G=280$, $T_A=400$, 電極 Ti/Au, $R_{20mW}=0.13M$, (b) $T_G=280$, $T_A=500$, 電極 Ti/Au, $R_{20mW}=7.5M$, (c) $T_G=280$, $T_A=600$, 電極 Ti/Au, $R_{20mW}=85M$, (d) $T_G=250$, $T_A=600$, 電極 Ti/Au, $R_{20mW}=13M$, (e) $T_G=300$, $T_A=600$, $R_{20mW}=16M$, 電極 Ti/Au, (f) $T_G=350$, $T_A=600$, 電極 Ti/Au, $R_{20mW}=1.5M$, (g) $T_G=250$, $T_A=600$, 電極 PdGeTi/Au, $R_{20mW}=1.4M$, (h) $T_G=300$, $T_A=600$, 電極 PdGeTi/Au, $R_{20mW}=1.4M$, (i) $T_G=350$, $T_A=600$, 電極 PdGeTi/Au, $R_{20mW}=0.07M$. ここで R_{20mW} は dc 抵抗値 (パルス光励起下). 図中の○は雑音実測値, 破線は熱雑音の寄与 (理論値), △はアンプ電流雑音の寄与 (実測値), □はアンプ電圧雑音の寄与 (実測値), + はこれら寄与の和, 点線は実験結果を説明できるように追加した $1/f$ 雑音, ○ は $1/f$ 雑音も加えた予測値.

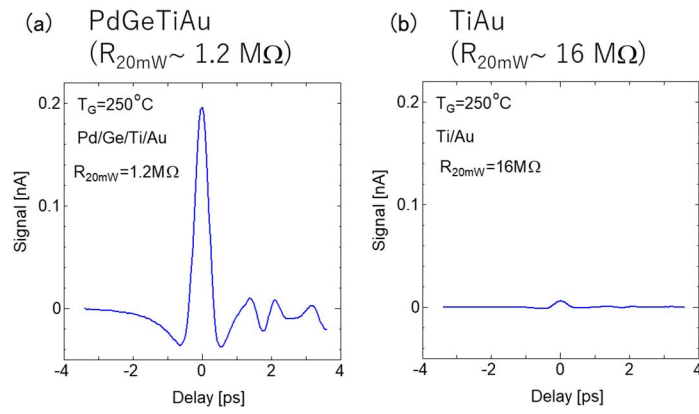


図 7：同一条件で作製した LTG-GaAs 上に作製した異なる電極材料の光伝導アンテナにおいて観測された THz 波波形の例．信号強度はパルス光励起状態での直流コンダクタンス ($= 1 / R_{20mW}$) に概ね比例している．

(4) 計画外の成果

本研究の主目的である光伝導アンテナの感度向上においては半導体基板上の金属グレーティングが最も重要なエレメントであるため、その理論的研究も継続していた．その結果、基板の厚さが有限の場合、即ち誘電体導波路上にメタルグレーティングが配置されている系において、連続準位中束縛状態 (BIC) と呼ばれる現象が見つかった (Kikkawa, Nishida, Kadoya, New J. Phys. 2019)．BIC は外部結合による減衰を取り込んだ非エルミートなハミルトニアンで記述される状態の一つである．本研究ではさらに、少し形状パラメータを変えると、BIC と同様に非エルミートな系で観測される例外点と呼ばれる状態が実現することを見出した (Kikkawa, Nishida, Kadoya, New J. Phys. 2020)．これらは近年注目を集めている物理学的にも、また応用上も極めて重要な現象であり、引き続き研究を進める必要がある．

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Masahiro Nitta, Ryota Nakamura, and Yutaka Kadoya	4. 巻 40
2. 論文標題 Measurement and Analysis of Noise Spectra in Terahertz Wave Detection Utilizing Low-temperature-grown GaAs Photoconductive Antenna	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves	6. 最初と最後の頁 1150-1159
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10762-019-00633-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 R. Kikkawa, M. Nishida, Y. Kadoya	4. 巻 21
2. 論文標題 Polarization-based branch selection of bound states in the continuum in dielectric waveguide modes anti-crossed by a metal grating	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 113020(1-11)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1367-2630/ab4f54	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 吉川 遼, 合田 圭佑, 上山 大輝, 西田 宗弘, 角屋 豊	4. 巻 47
2. 論文標題 半導体基板上金属グレーティングにおける開口下の光増強	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 レーザー研究	6. 最初と最後の頁 375-379
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 R. Kikkawa, M. Nishida, Y. Kadoya	4. 巻 22
2. 論文標題 Bound states in the continuum and exceptional points in dielectric waveguide equipped with a metal grating	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 073029(1-14)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1367-2630/ab97e9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 吉川 遼、西田 宗弘、角屋 豊
2. 発表標題 金属グレーティングを有する誘電体導波路における反交差を伴う連続準位中束縛状態：金属厚さ依存性
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryo Kikkawa, Munehiro Nishida, Yutaka Kadoya
2. 発表標題 Bound states in the continuum in the dielectric waveguide with metal grating controlled by polarization
3. 学会等名 The 42nd Photonics & Electromagnetics Research Symposium (PIERS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaka Kadoya
2. 発表標題 Noises in photoconductive antennas under fs pulse excitation
3. 学会等名 The 5th International Symposium on Microwave/THz Science and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaka Kadoya
2. 発表標題 Quantitative evaluation of linear and nonlinear absorption at 1560 nm in low-temperature-grown GaAs for the use in photoconductive antennas
3. 学会等名 The 11th Asia-Pacific Laser Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 新田真大, 角屋豊
2. 発表標題 THz波検出用低温成長GaAs光伝導アンテナにおける雑音の解析
3. 学会等名 2018年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 合田圭佑, 吉川遼, 上山大輝, 西田宗弘, 角屋豊
2. 発表標題 THz波検出用光伝導アンテナのための金属負レーティングの設計
3. 学会等名 2018年度応用物理・物理系学会中国四国支部合同学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉川 遼, 西田 宗弘, 角屋 豊
2. 発表標題 金属グレーティングによって反交差した誘電体導波路モードにおける連続準位中束縛状態：偏光による出現枝選択
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中村 亮太, 新田 真大, 角屋 豊
2. 発表標題 光伝導アンテナにおける雑音の定量評価
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaka Kadoya
2. 発表標題 Impact of electrical contact between electrode metal and low-temperature-grown GaAs on the signal and noise of photoconductive antennas for THz wave detection
3. 学会等名 SPIE Defense + Commercial Sensing (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yutaka Kadoya
2. 発表標題 Terahertz Time-Domain Spectroscopy Using Photoconductive Antenna
3. 学会等名 2020 IEEE International Symposium on Radio-Frequency Integration Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	西田 宗弘 (Nishida Munehiro)	広島大学・大学院先進理工系科学研究科・准教授 (15401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------