

平成 21 年 5 月 16 日現在

研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2007～2008  
 課題番号：19760236  
 研究課題名(和文) 固体伝送線路を用いた広帯域テラヘルツ分光チップの高機能化に関する研究  
 研究課題名(英文) Study of functionalized terahertz-spectroscopic-chips based on solid state transmission lines.  
 研究代表者  
 北川 二郎 (KITAGAWA JIRO)  
 広島大学・大学院先端物質科学研究科・助教  
 研究者番号：90346528

研究成果の概要：マイクロストリップ(MSL)線路及びコプレーナストリップ(CPS)線路に基づいた、THz 分光チップの高機能化と更なる高性能化に関して研究を行った。その結果、光ファイバと結合した MSL 分光チップを開発し、リモートセンサーヘッドとして機能させることに成功した。また、透明電極 ITO を裏面導体とする MSL の開発にも成功し、分光チップとして機能することを確かめた。更に、低誘電率プラスチック基板を用いた CPS 分光チップを開発し、測定帯域が 4THz にまで広がることを示した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,900,000	0	1,900,000
2008 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,000,000	330,000	3,330,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：テラヘルツ・マイクロストリップ・コプレーナストリップ・分光チップ・光ファイバ・ITO

## 1. 研究開始当初の背景

集積化 THz 分光チップは、微量試料測定も可能とし、これからの THz センサーネットワーク構築に欠かせない要素技術となっている。集積化 THz 分光チップの研究に、マイクロストリップ(MSL)線路やコプレーナストリップ(CPS)線路などの固体伝送線路を用いたものがある。これらの伝送線路において伝送損失を抑制する必要があるため、誘電体層や誘電体基板に低誘電率材料を用いることが望ましい。最近、低誘電率ポリマーの製作が容易と

なり、集積化 THz 分光チップの研究が国内外で本格的に始まりつつある時期といえる。

今までの固体伝送線路をベースにした THz 分光チップの研究では、測定帯域が狭いという問題点があった[1,2]。申請者は広帯域に測定できる集積化 THz 分光チップの開発を試みてきた。申請者が最近開発した THz 分光チップは、チップ裏面からの光アクセス(光パルスは THz 波発生・検出に必要)を実現した埋込み型 MSL 線路をベースとしている[3]。低誘電率ポリマーの一種ポリイミドを誘電体層

としており、MSL線路上部にもポリイミドを塗布している(保護層)。この保護層の厚さを調節することで、極性の強い溶液でも分光感度を調節でき、50 GHz~1 THz という広帯域での測定を可能にした。この1年の間にも国内外で以下の THz 分光チップ研究が報告されている。英リード大学グループが、スタブ型共振器と MSL 線路を組み合わせたセンサーで誘電体塗布膜の測定を報告している[4]。理化学研究所テラヘルツ生体センシングチームが申請者と同様な MSL 線路による広帯域分光チップの開発について報告した[5]。以上の研究動向から、他の研究グループとの差別化をより明確にするためには、固体伝送線路を利用した分光チップの高機能化が必要である。

[1]R. Sprik et al.: Appl. Phys. Lett. 51 (1987) 548.[2]M. Nagel et al.: Appl. Phys. Lett. 80 (2002) 154.[3]T. Ohkubo et al.: Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 212511.[4]J. Cunningham et al.: Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 071112.[5]T. Ouchi et al.: Conference Digest of the Joint 31<sup>st</sup> International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 14<sup>th</sup> International Conference on Terahertz Electronics (2006) 273.

## 2. 研究の目的

(1) 本分光チップで、自由空間 THz 分光と同じように試料自身の光学定数を算出できるか確認することは、高機能性を付加価値として高めるために極めて重要である。そこで、THz 全反射減衰(THz-ATR)分光装置を用いて、牛血清アルブミン水溶液の光学定数を測定する。この結果を、申請者が開発した MSL 型分光チップで得た実効光学定数と比較検討することで、分光チップから試料自身の光学定数へキャリブレーション可能か調べる。

(2) チップ裏面からの光アクセス可能な本チップと光ファイバの一体化が実現できれば、THz リモートセンサーヘッドとして他グループの分光チップにはない機能性をもたせることができる。そこで、光ファイバ結合型分光チップを開発する。

(3) 透明導電膜酸化インジウムスズ(ITO)を MSL 型分光チップの裏面導体として導入することができれば、より簡便にファイバ結合型分光チップを達成できる。そこで ITO を裏面導体とする MSL を作製する。そしてその THz 波伝搬特性を調べ、水の分光測定を行う。

(4) 測定対象を粉末などにも広げることは、

高機能化だけでなく THz 技術の産業応用促進に極めて有益である。粉末試料への適用を考えた場合、MSL 線路より線路上の電界分布が広い CPS 線路の方が、試料と THz 電界との相互作用を大きくとれるため有利である。しかし CPS 線路の場合、放射損失を抑制するために低誘電率基板を用いなければならない。そこで、有限差分時間領域(FDTD)計算による素子設計、低誘電率基板を用いたプロセス技術の確立とチップの試作を行う。

## 3. 研究の方法

**素子作製:** THz 波発生源・検出器には、MBE 装置で成膜した低温成長 GaAs(LT-GaAs)薄膜を用いた。MSL 線路の場合、基板にはガラスを、誘電体層にはポリイミドや BCB を用いた。裏面導体および上部信号線は、Au 蒸着とリフトオフプロセスで形成した。CPS 線路の場合、基板は低誘電率プラスチック(シクロオレフィン)基板(Pax, Tsurupica)を採用した。CPS 線路は Au で形成した。LT-GaAs 膜は van der Waals ボンディング法によって誘電体層や基板に貼り付けた。

**THz-ATR 測定:** THz-ATR 測定は、申請者が所有している透過型 THz-TDS 測定系に、Si プリズムを挿入することで行った。

**THz 時間領域測定:** 光源にはモードロックチタンサファイアレーザ(中心波長 800 nm, パルス幅 200 fs, 繰り返し周波数 76 MHz)または、ファイバレーザ(中心波長 1560 nm, パル

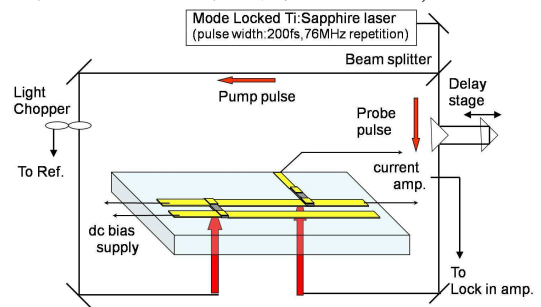


図1 標準的な THz 分光チップ測定系。

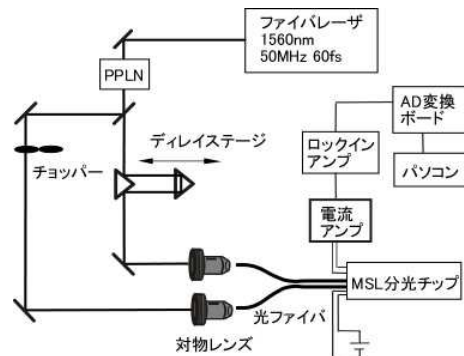


図2 光ファイバ結合型分光チップの測定系。

ス幅 60 fs, 繰り返し周波数 50 MHz)を用いた (図 1, 図 2 参照). レーザからのパルス光をポンプ・プローブ光に分離し, それぞれを THz 波発生源と THz 波検出器に照射する. プローブ光に遅延ステージで時間遅延をつけることで, THz 波時間波形を得ることができる. THz 波検出器からの信号は増幅後, ロックイン検出を行っている.

**ITO 成膜**: ITO 薄膜は高周波スパッタ装置により成膜を行う. 本研究では, 基板温度を 400 °C まで, アニール条件を 400 °C・1 時間で行えるように, 高周波スパッタ装置やアニール装置を改良した. そして, 酸素分圧を大きく振って成膜し, ITO の導電率がどのように変化するかを系統的に調べた.

**FDTD 計算**: FDTD 計算は, みずほ情報総研の EMERGE で行った.

#### 4. 研究成果

**実効光学定数のキャリブレーション**: 牛血清アルブミン水溶液は, 濃度 0~0.35 g/ml のものを用意した. キャリブレーションは, MSL 型 THz 分光チップと THz-ATR 測定で得られた水の結果を用いて, 以下の様に行った. THz 分光チップで水に対して得られた屈折率と吸収係数を  $n_{eff}(chip)$ ,  $\alpha_{eff}(chip)$  とし, THz-ATR 測定で得られたものを  $n(ATR)$ ,  $\alpha(ATR)$  としたとき, スケール因子を以下の式で導入した.

$$A(f) = \frac{n(ATR) - 1}{n_{eff}(chip)}, B(f) = \frac{\alpha(ATR)}{\alpha_{eff}(chip)}$$

ATR 測定では 0.2 THz 以下の THz 波スペクトル強度が弱いこともあり, 光学定数を精度よく求めることができなかった. 従って 0.2 THz 以下のスケール因子は, 0.2 THz 以上の実験から求めたスケール因子を直線で外挿したものを使用した. このスケール因子を他濃度のアルブミン水溶液にそのまま適用し, MSL 型分光チップで得られた実効光学定数を換算した.

図 3 には換算した後の吸収係数と屈折率の周波数依存性を丸印でプロットしている. 実線が ATR 測定で得られた光学定数を表している. 図を見ると, 換算後の光学定数と ATR 測定より得られた光学定数がよく一致していることがわかる. 従って, MSL 型分光チップを用いても, 試料自身の光学定数を得ることが可能であると初めて明らかとなった. 両測定結果をさらに比較してみると, MSL 型分光チップでは高周波領域で, ATR 測定よりデータのばらつきが大きくなるものの, ATR 法で測定が困難な低周波領域では精度良くデータ

を得ることができていることがわかる. 水に関しては, ATR 測定では評価できないマイクロ波領域でも文献値 (H.J.Liebe et al.: Int.J.Infrared&Millimeter Waves 12(1991)659) と合致している (図 3 挿入図参照). これは MSL 型分光チップでは, 低周波領域でも THz 波の電磁界の閉じ込めが有効に働いているためと推測している. 今後は他の物質系にも適用可能か調べる必要がある.

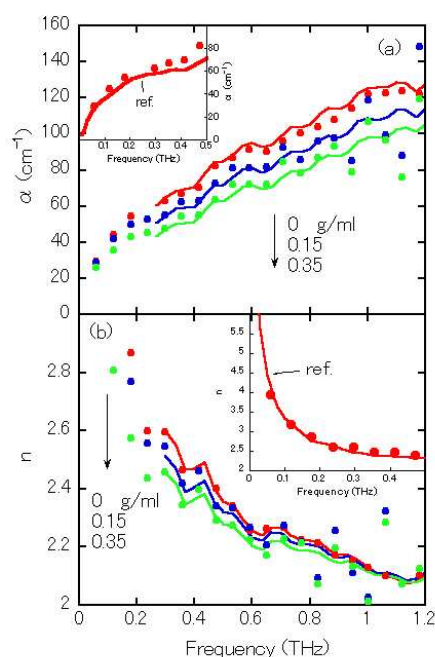


図 3 MSL 型分光チップから換算した後の光学定数(丸印)と, ATR 測定より得られた光学定数(実線)の比較. 挿入図は分光チップから求めた水の光学定数(丸印)とマイクロ波領域で報告されている文献値(実線)との比較.

**光ファイバ結合型 THz 分光チップの開発**: 光ファイバは 800 nm 帯の波長に対応した FC コネクター付きシングルモードファイバ(モード径 5 μm, NA=0.12)を採用した. ファイバ長は 60 cm である. 二本のファイバを MSL 型分光チップの THz 波発生源・検出器間距離 1 mm に離して保持する必要があるため, そのホルダーを設計・作製した. ホルダーはアクリル製でファイバごとに用い, ファイバのクラッド保護層(径 250 μm)を挟み込む構造となっている. このホルダーを分光チップに

接着剤で固定した後、アルミケースに電気配線と光ファイバを一緒に収めている。分光チップとアルミケースはエポキシ樹脂で接着し、液体試料のアルミケース内への侵入を防いでいる。分光チップの電極パッドも液体による電氣的ショートを防ぐために同じ樹脂で保護されている。このようにして開発した素子を図 4 に示す。このセンサーによって、図 4 写真のように液体に浸漬して測定することが可能となった。この素子を用いて THz 波時間波形を測定したところ、THz 波発生源から 1 mm 伝搬後の帯域は、2 THz から 0.6 THz まで狭くなった。これは群速度分散の影響を受けてパルス幅が広がったためである。しかしながらこのファイバ結合型素子を用いて、水・メタノール・エタノールを測定し光学定数による判別に成功した。さらに水/エタノール混合液体も測定し、5%のエタノール分解能で光学定数の検量線を引けることがわかった(図 5)。本研究により、THz 分光チップを THz リモートセンサーヘッドとして機能させることに世界で初めて成功した。今後の課題として、測定の安定性、分解能の向上などが挙げられる。

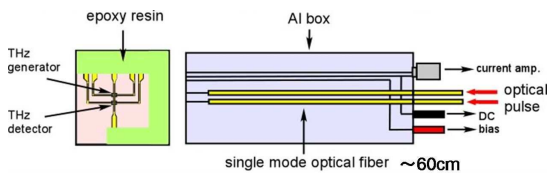


図 4 光ファイバ結合型分光チップの模式図(上)と写真(下)。

**ITO を裏面導体とする MSL 型分光チップの開発:** ITO の高周波スパッタ装置による成膜条件を、基板温度 400 °C、酸素分圧 0 %とすることで導電率が  $6 \times 10^3 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$  まで向上することを見出した。そこで、導電率が  $6 \times 10^3 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$  の ITO を裏面導体とした MSL が分光チップとして機能するか、実際に素子を作製して調べた。THz 波時間波形を測定したところ、Au が裏面導体の時に必要であった開口による反射は、観測されなくなった。

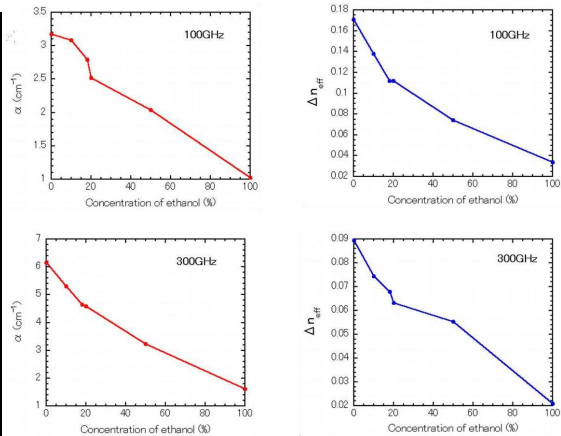


図 5 光ファイバ結合型センサーで測定して得られた水/エタノール混合液体の吸収係数と実効屈折率の検量線。

次にこの分光チップで水の分光を行った。図 6 は測定で得られた吸収係数の周波数依存性である(赤)。比較のために、裏面導体が Au の MSL 型分光チップで得られた吸収係数も示す(青)。この素子における保護層の厚さは 10 μm であるが、実際の保護層厚さが両者で異なるために吸収係数に差が出たと考えられる。しかし、ITO を裏面導体としても分光チップとして機能することがわかった。現在のところ、Au が裏面導体の時よりも帯域が若干狭いので、今後 THz 波伝搬特性の向上が望まれる。

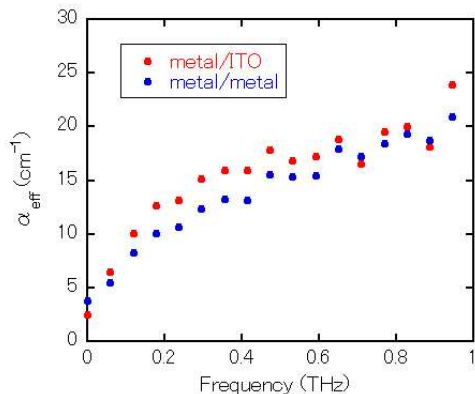


図 6 metal/ITO(ITO が裏面導体)と metal/metal(Au が裏面導体)の MSL 型分光チップで得られた水の吸収係数の比較。

**広帯域 CPS 型 THz 分光チップの開発:** シクロオレフィン基板は 1~3 THz の比誘電率が 2.3 である。また、この基板は赤外・可視域でも透明なため、THz 波発生源・検出器の励起



用光パルスを基板裏面から入射できる利点がある。シクロオレフィン基板を用いたプロセス技術を他に先駆けて立ち上げ、実際に CPS 線路を作製した。THz 波発生源・検出器間の距離は 1 mm で、線路幅と線路間隔は共に 20  $\mu\text{m}$  である。比較のため、比誘電率がシクロオレフィン基板よりも高いサファイア (1 THz で 10.9), クォーツ (1 THz で 4.4) 基板上 CPS 線路も作製し、伝搬定数を測定した。

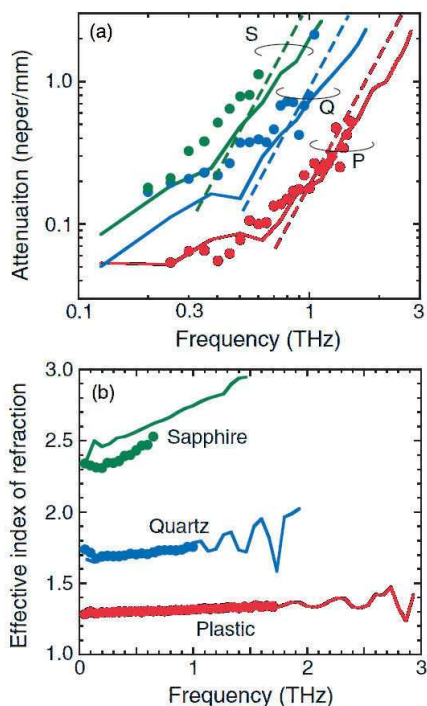


図 7 サファイア(S), クォーツ(Q), プラスチック(P, シクロオレフィン)基板上 CPS 線路の(a)減衰定数と(b)実効屈折率の周波数依存性。実線は FDTD 計算より求めた減衰定数と実効屈折率で、(a)の破線は周波数の 3 乗依存性を示している。

実験から得られた減衰定数と実効屈折率の結果を図 7 に示す。シクロオレフィン基板上 CPS 線路においては低分散・低損失が実現していることがわかる。図 7(a)中の破線は周波数の 3 乗依存性を表しており、放射損失に特徴的な周波数特性として知られている。各線路に対して、実験で得られた減衰定数も高周波側ではほぼ周波数の 3 乗に比例しているとみなせ、放射損失の影響が見て取れる。しかしながら、基板の誘電率が低くなるにつれて、放射損失の影響が支配的になる周波数が高周

波域に系統的にシフトしている。従って、シクロオレフィン基板を用いることで放射損失の影響を抑制し、伝搬特性が広い周波数域にわたって向上することを明らかにした。参考のために図 7 には FDTD 計算から求めた減衰定数と実効屈折率も載せている。実験と良い一致を示しており、本研究で採用した伝搬定数を求める手法が妥当であったことを保証している。

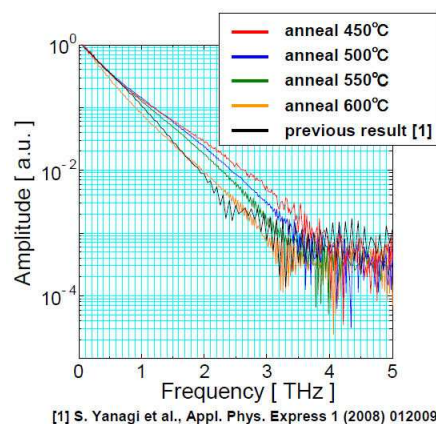


図 8 CPS 伝送線路における 1 mm 伝搬後の THz 波フーリエ振幅スペクトル。LT-GaAs の成長温度は 250  $^{\circ}\text{C}$ , アニール温度は 450~600  $^{\circ}\text{C}$  まで変えている。

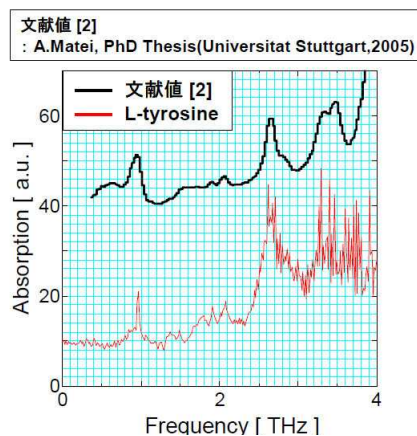


図 9 L-チロシンの吸収係数。

更に、THz 波発生源・検出器に用いる LT-GaAs の成長・アニール条件の最適化を行った。成長温度は 220, 250, 280  $^{\circ}\text{C}$  の 3 条件で、成長後の *ex-situ* アニール温度は 450, 500, 550, 600  $^{\circ}\text{C}$  の 4 条件で行った。図 8 は成長温度 250  $^{\circ}\text{C}$  の LT-GaAs 薄膜を用いた時の、フーリエ振幅スペクトルのアニール温度依存性

を示す。アニール温度が低いほど帯域が伸びることがわかり、450 °Cにおいて 4 THz という広帯域化を実現した。これは LT-GaAs 中のキャリア寿命がアニール温度の低下とともに短くなるのが原因である。顕著な成長温度依存性は確認できなかった。

シクロオレフィン基板上 CPS 線路による分光で測定帯域が本当に広がるか、粉末試料の分光測定を行って確認した。試料には L-チロシンを用いた。図 9 には 4 THz の帯域をもつ CPS 型分光チップで分光測定した結果を示す。4 THz 近くまで文献と一致する指紋スペクトルの取得に成功し、今までの伝送線路型分光チップより広帯域測定が可能であることを明らかにした。今後、より広帯域化を目指すには、非線形光学結晶を THz 波発生源に用いることが望まれる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① S.Yanagi, M.Onuma, J.Kitagawa, and Y.Kadoya, "Propagation of terahertz pulses on coplanar strip-lines on low permittivity substrates and a spectroscopic application" Appl.Phys.Express, 1, 012009-1 ~012009-3 2008 査読有り

② Y.Kadoya, M.Onuma, S.Yanagi, T.Ohkubo, N.Sato, and J.Kitagawa, "THz wave propagation on strip lines: devices, properties, and applications" Radioengineering, 17, 48-55 2008 査読有り

[学会発表] (計 6 件)

① N.Ohta, S.Yanagi, M.Onuma, J.Kitagawa, and Y.Kadoya, "Propagation of Terahertz Pulses on Polymer-based Coplanar Striplines", Asia Pacific Microwave Conference 2008, 2008.12.18, Hong Kong, China.

② 佐藤尚子, 北川二郎, 角屋豊「マイクロストリップ線路の不連続点における THz パルスの伝搬特性」第 69 回応用物理学会学術講演会, 2008.9.3, 中部大学

③ 秋山泰隆, 北川二郎, 角屋豊「光ファイバ結合型 THz 分光チップの開発」第 55 回応用物理学会関係連合講演会, 2008.3.29, 日本大学理工学部

④ 大田直人, 大沼匡之, 北川二郎, 角屋豊「THz コプレーナストリップ線路の広帯域化: 光伝

導スイッチ作製条件の見直し」第 55 回応用物理学会関係連合講演会, 2008.3.28, 日本大学理工学部

⑤ J.Kitagawa, Y.Akiyama, M.Onuma, and Y.Kadoya, "Fiber-coupled sensor chip based on micro-strip-line working in THz regime", The Joint 32<sup>nd</sup> International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 15<sup>th</sup> International Conference on Terahertz Electronics, 2007.9.6, Cardiff, UK.

⑥ J.Kitagawa, S.Yanagi, M.Onuma, and Y.Kadoya, "THz fingerprint spectra detected by sensor chips based on coplanar strip-lines made on low-permittivity plastic substrate", The Joint 32<sup>nd</sup> International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 15<sup>th</sup> International Conference on Terahertz Electronics, 2007.9.3, Cardiff, UK.

[図書] (計 1 件)

① テラヘルツ技術総覧「2.5.2 テラヘルツ伝送線路」 pp.84-92, 「2.5.3 準光学系」 pp.93-98, 「9.3.2 バイオチップ」 pp.621-626 北川二郎 NGT コーポレーション(2007年11月)

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

北川 二郎 (KITAGAWA JIRO)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・助教

研究者番号: 90346528

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者