

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23656010

研究課題名(和文)窒化物縦光学フォノン・プラズモン結合モードによるテラヘルツ光源科学の新展開

研究課題名(英文) Science of THz light source based on longitudinal phonon-plasmon coupled mode in nitride materials

研究代表者

石谷 善博 (Ishitani, Yoshihiro)

千葉大学・工学(系)研究科(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、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、周波数30THz以下のテラヘルツ光源についてフォノンを用いたデバイス原理・構造の提案を目的とした。研究の結果、膜厚半波長以下のGa<sub>n</sub>およびAlN薄膜において、ヘテロ界面での分極電荷によるp偏光の電気双極子吸収が確認された。ストライプ型段差構造ではs偏光において効果が確認された。同一振動面に二つのフォノンモードを持つp-GaInPにおけるラマン散乱スペクトルを解析し、価電子帯間の電子遷移による連続準位とLOフォノン2準位との間にファノ効果と同様の量子干渉の成立が確認され、LOフォノン系電磁誘起透明化を用いた光密度閾値のないTHzコヒーレント光発生が原理的に可能であることが分かった。

研究成果の概要(英文)： The purpose of this research is the proposal of the principle and structure of THz light source with the frequency of less than 30 THz. It was found that absorption of p-polarized light by Ga<sub>n</sub> and AlN thin films with the thickness less than a wavelength was detected. Also s-polarized light was absorbed in the stripe-shaped mesa structure with the width of less than a wavelength. Fano-type quantum interference was observed for the system of two LO phonon modes vibrating in the same plane and one continuum of inter-valence band transition in p-GaInP films. These results suggest the possibility of the coherent THz light emission by LO phonon system based on electromagnetic induced transparency.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用物性・結晶工学

キーワード：赤外光 THz 量子干渉 LOフォノン 界面分極

### 1. 研究開始当初の背景

新薬開発、安全対策、高速通信など重要技術の飛躍的進歩を約束するテラ( $10^{12}$ )ヘルツ (THz)波のコンパクト光源開発について、共鳴トンネルダイオード (RTD) では数テラヘルツへの高周波数化が困難であり、量子カスケードレーザでは 30 THz 程度以下の領域での室温動作が困難である。

### 2. 研究の目的

本研究は、数 30THz の周波数域でのコンパクト光源実現のため、従来の光伝導アンテナ構造や半導体表面付近の光デンプー効果から発想転換する。本研究では、半導体ダブルヘテロ構造やストライプ型メサ構造中の LO または LO フォノン・プラズモン結合 (LOPC) モードに伴う界面分極電荷から電気双極子を生成させ、更に電磁誘起透明化を用いて効率的連続的 THz 波発生を行う、従来 LO フォノンでは考えられてこなかった手法の提案を目的とする。

### 3. 研究の方法

GaN 薄膜を中心に、赤外反射分光や全反射分光などを用いて反射ロスの観測を行った。分極電荷による電気双極子形成の理論式を構築して、LO フォノン周波数における薄膜の上下界面での分極電荷による p 偏光の電気双極子吸収の確認を行った。面発光を想定した構造では、ストライプ状のメサ構造が候補として挙げられ、誘導結合型プラズマエッチングにより 500nm 程度の段差を持つメサ構造を製作して s 偏光による効果の発現を検討した。

LO フォノン系による電磁誘起透明化の可能性について、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、窒化物ではないが、一振動面に 2 つの LO フォノンモードをもつ  $Ga_{0.5}In_{0.5}P$  を用い、これまで他の材料で Fano 効果が確認されやすかったことが分かっている p 型薄膜を用いた。

### 4. 研究成果

#### (1) 電気双極子形成

GaN の  $\Gamma$  点 LO フォノンエネルギーに対する光波長は空気中で  $13\mu m$  であり、この付近で屈折率は大きく変化する。LO フォノンサファイア基板上的 GaN 薄膜 (膜厚  $2\mu m$ ) および SiC 基板上 AlN 薄膜 (膜厚  $0.5\mu m$ ) を用いた。 $30^\circ$  入射偏光赤外反射分光および Ge プリズムおよびダイヤモンドプリズムを用いた  $45^\circ$  入射全反射分光を行った。図 1 にその結果を示す。表面および界面のフォノンポラリトンモードは入射角およびプリズムの屈折率に依存して変化する。スペクトル中の各ピークに対する割り付けが行われ (A, B, D), 界面ポラリトンモードが判別されたが、これらに属さず、入射角やプリズム屈折率に依存しないモード (C) が LO フォノン位置 ( $\sim 740\text{ cm}^{-1}$ ) に観測される。理論計算の結果 (雑誌論文 1), LO

フォノン位置で吸収が現れることが確認された。このため、観測されたものは界面の分極電荷振動による電気双極子吸収効果であると結論された。同様の結果は AlN 薄膜でも得られた。

次に、ライン幅  $6\mu m$ , 周期  $14\mu m$  のストライプ状メサ構造の加工を行った u-GaN につ

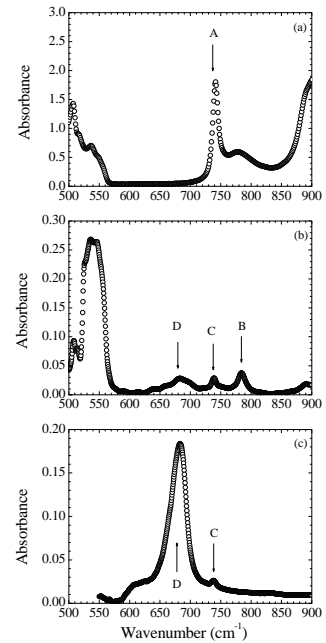


図 1  $30^\circ$  入射による反射 (a),  $45^\circ$  入射での ATR: ダイヤモンドプリズム (b), Ge プリズム (c) での吸光度スペクトル。

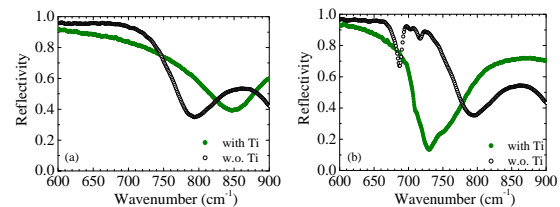


図 2 ストライプ状メサ構造での反射スペクトル。(a):ストライプ方向に平行な電場,(b):ストライプ方向に垂直な電場。Ti 埋め込みの有無での比較。

いて、メサ構造の段差下部に Ti を埋め込んだものと埋め込まないものを試料とし、s 偏光入射で、偏光方向がストライプ方向に平行・垂直の場合の反射率測定を行った。その結果を図 2 に示す。ストライプ方向に垂直な電場がかかりリッジ側面に分極電荷が誘起される場合のみについて LO フォノン位置周辺に大きな反射ロスが生じていることがわかり、薄膜の場合と同様の原理が生じていると考えられる。本研究では、ラマン効果による LO フォノン発生に伴う THz 波発生は検知されなかった。MCT 検知器の感度などを含めて今後さらに検討を進める。

#### (2) 電磁誘起透明化

$Ga_{0.5}In_{0.5}P$  は InP 様と GaP 様の 2 種の LO フォノンモードを持つことが分かっている。5.4, 6.6, 8.7,  $9.4(\times 10^{17}\text{ cm}^{-3})$  の 4 種の正孔密度をもつ p 型  $Ga_{0.5}In_{0.5}P$  (GaAs 基板上) を試料とし、励起波長 785nm によりラマン測定を行った。本研究で取り扱った量子干渉の概念図を図 3 に示す。

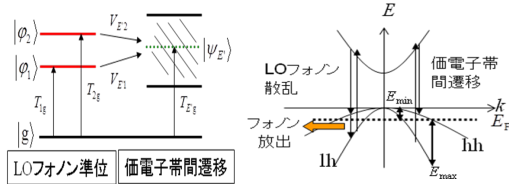


図3 (a):2 離散準位と連続準位の干渉。(b): 電子遷移と量子干渉の概念図。

Fano 効果の理論モデルを参考に次のスペクトル関数を構築した。

$$F(E) = A_0 + \sum_{j=1}^3 A_j \exp\left[-\frac{(E-m_j)^2}{2s_j^2}\right] + k\sqrt{E} \frac{(\epsilon_5\epsilon_6q_4 + \epsilon_4\epsilon_6q_5 + \epsilon_4\epsilon_5q_6 + \epsilon_4\epsilon_5\epsilon_6)^2}{\epsilon_4^2\epsilon_5^2\epsilon_6^2 + (\epsilon_4 + \epsilon_5 + \epsilon_6)^2}$$

$$\epsilon_j = (E - E_j) / \Gamma_j$$

$A_j, m_j, s_j, k, q_j, E_j, \Gamma_j$  はフィッティングパラメータである。ここでは、InP 様および GaP 様の TO フォノン ( $330 \text{ cm}^{-1}$  付近,  $370 \text{ cm}^{-1}$  付近) と, 2LA ( $400 \text{ cm}^{-1}$ ) の出現を考慮し, これらはガウス関数として取扱い,  $360 \text{ cm}^{-1}$  付近の InP 様 LO フォノンと  $380 \text{ cm}^{-1}$  付近の GaP 様 LO フォノン, 一部長距離秩序構造を持つことによる  $350 \text{ cm}^{-1}$  付近の  $A_1$  LO フォノンの量子干渉効果を受けることによるスペクトル形状変化を考察した。右辺第 3 項が量子干渉部であり,  $q_j$  は  $\text{Ga}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{P}$  の電子系・フォノン系のエネルギー構造から理論的に予測された負の値とした。 $A_1$  による  $q_6$  は無視できることが分かった。フィッティングパラメータが多いが, 各パラメータが主に効くスペクトル範囲は限られ, 一意性を持つパラメータが得られた。フィッティング結果を図 4 に示す。この結果, 量子干渉効果を考慮した関数を用いて初めてスペクトルがフィッティングされることが分かった。理論では, 完全な共鳴過程に対してスペクトルやパラメータの計算が行われた。その結果, スペクトル形状が実験と異なり, これはラマン測定が非共鳴励起条件下で行われたためと考えられる。図 5 にフィッティングの結果得られた主なパラメータを示す。 $q_j$  はキャリア密度の増加とともに絶対値が減少しており, 干渉効果が強くなっていると判断されるが, これは非共鳴励

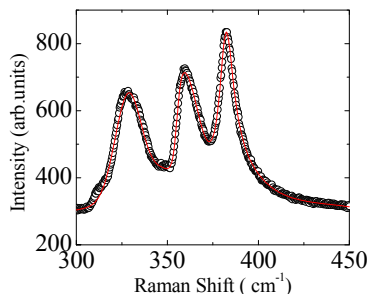


図4 785nm 励起時のラマンスペクトルとフィッティング結果。p= $9.4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ 。

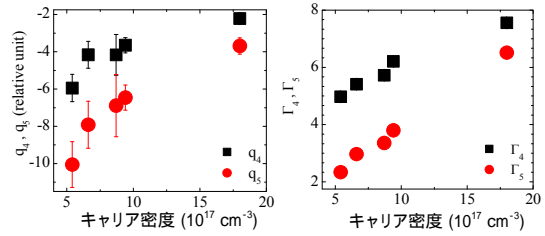


図5 励起波長 785nm のときのスペクトル特性パラメータ。

起条件に対する理論解析と比較する必要がある。 $\Gamma_j$  はキャリア密度の増加とともに増加しており,  $q_j$  の変化と整合している。フォノン自体のエネルギー幅の広がりについて, TO フォノンの構造解析から, その影響は小さいと考えられる。これらの結果, 得られたパラメータは干渉効果の存在を示していると考えられる。

本研究の結果, 1 波長以下の構造の界面における分極電荷による電気双極子形成が確認され, LO フォノン励起による輻射の可能性を示した。フォノン系でコヒーレント光を発生するために電磁誘起透明化が求められるが, 2 LO フォノンと価電子帯間遷移の連続状態によりこの量子干渉が起きることが示された。これらにより, 本研究で提案する THz デバイスの基本要素が成立することが示された。今後は, ストライプ状メサ構造におけるラマン過程での LO フォノン励起とそれによる THz 帯域での輻射の観測, 量子干渉・電磁誘起透明化の光吸収過程における観測について研究を進める。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 3 件)

1. Y. Ishitani, "Theoretical and experimental study of the optical absorption at longitudinal phonon or phonon-plasmon coupling mode energy: An example of GaN" J. Appl. Phys. **112**, 063531(1-8) (2012) (査読有)
  2. D. Imai, Y. Ishitani, M. Fujiwara, X. Q. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, "Carrier recombination processes in Mg-doped N-polar InN films", Physica Status Solidi B249, pp.472-475 (2012) (査読有)
  3. Y. Ishitani, M. Fujiwara, D. Imai, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, "Electron and hole scattering in InN films investigated by infrared measurements", Physica Status Solidi A, 207, pp. 56-64 (2012) (査読有)
- [学会発表](計 18 件)

国際

1. Y. Ishitani, "Carrier recombination dynamics of III-nitrides based on infrared spectroscopy", AnalytiX 2014, April 22- April 28, Dalian, China (Invited)
2. K. Hatta and Y. Ishitani, "Phonon polariton and infrared absorption effects in III-nitride

- thin films**”, The 38<sup>th</sup> International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, P3-51, Sept. 1-6, 2013, Mainz, Germany, poster
3. Y. Ishitani, “**Infrared measurements in the study of III-nitrides**”, Intensive Discussion on Growth of Nitride Semiconductor, 22-23 Oct. 2012, Sendai, Japan (invited)
  4. Y. Ishitani, “**Interface phonon polariton and infrared optical absorption in nitride thin films**”, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, 14-19 Oct. 2012, Sapporo, Japan, oral
  5. D. Imai, Y. Ishitani, M. Fujiwara, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, “**Mid and Far-Infrared analysis of the local electron-lattice dynamics on carrier recombination processes of InN films**”, International Workshop on Nitride Semiconductors 2012, PR4-3, 14-19 Oct. 2012, Sapporo, Japan, oral
  6. D. Imai, Y. Ishitani, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, “**Effects of Carrier Transport and Local Lattice Temperature on Nonradiative Recombination processes in InN Films**”, 10<sup>th</sup> International Symposium on Nitride Semiconductors, Aug. 25-30, 2012, Washington, USA, oral
  7. D. Imai, Y. Ishitani, M. Fujiwara, X. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, “**Analysis of non-radiative carrier recombination processes in InN films by mid-infrared spectroscopy**”, Electronic Material Symposium, July, 2012, State College, PA, USA, oral
- [国内]
1. 「**p 型 GaInP を用いた 2 種フォノンと連続準位の量子干渉効果**」, 坂本裕則, 石原一行, 馬蓓, 森田健, 石谷善博, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 18 日 (17-20 日), 青山大学
  2. 「**InN の非輻射再結合速度決定機構におけるキャリア・フォノン輸送特性**」, 今井大地, 森田健, 塚原捷生, 馬蓓, 石谷善博, 王新強, 草部一秀, 吉川明彦, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 20 日 (17-20 日), 青山大学
  3. 「**III 族窒化物半導体における光子 - フォノン相互作用**」, 八田佳祐, 石谷善博, 日本分光学会テラヘルツ分光部会シンポジウムテラヘルツ分光法の最先端 VII ~ どこへ行くテラヘルツ分光~, 2013 年 10 月 28 日 (28, 29 日) 京都大学
  4. 「**窒化インジウムにおけるフォノン放出を伴う非輻射再結合**」, 今井大地, 石谷善博, 王新強, 吉川明彦, 日本物理学会 26pKA-2, 2013 年 9 月 26 日 (25-28 日) 徳島大学
  5. 「**InN のバンド端発光効率低減過程におけるフォノン輸送特性の影響**」, 今井大地, 石谷善博, 王新強, 吉川明彦, 第 74 回秋季応用物理学会学術講演会, 2013 年 9 月 16 日 (16-20 日), 同志社大学

6. 「**窒化物半導体における光子 - フォノン相互作用**」, 八田佳祐, 石谷善博, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 2013 年 3 月 27 日 (3 月 27 日 - 30 日), 神奈川工科大学
7. 「**InN のバンド端発光の低減におけるフォノン放出による非輻射性再結合過程**」, 石谷善博, 第 22 回格子欠陥フォーラム・励起ナノプロセス研究会・理研シンポジウム合同シンポジウム, 2012 年 09 月 22 日マホロバマインズ三浦 (招待講演)
8. 「**InN のキャリア再結合における局所的電子・格子ダイナミクスの影響**」, 今井大地, 石谷善博, 王新強, 草部一秀, 吉川明彦, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 13 日 (11 日 ~ 14 日) 愛媛大学・松山大学
9. “**Carrier scattering processes in p and n type InN films by infrared spectroscopy**”, M. Fujiwara, Y. Ishitani, X. Q. Wang, D. Imai, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 11 日 (11 日 ~ 14 日), 愛媛大学・松山大学
10. “**Characteristics of carrier recombination processes in n-type and p-type InN films analyzed by infrared spectroscopy**”, D. Imai, Y. Ishitani, X. Q. Wang, K. Kusakabe, and A. Yoshikawa, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 11 日 (11 日 ~ 14 日), 愛媛大学・松山大学
11. 「**近・中赤外域分光による InN の輻射・非輻射再結合過程解析**」, 今井大地, 石谷善博, 王新強, 草部一秀, 吉川明彦, 第 4 回窒化物半導体結晶成長講演会, 2012 年 4 月 27 日 28 日, 東京大学生産技術研究所 (発表奨励賞)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]  
出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

[その他]  
ホームページ:  
<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・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 60291481
  - (2) 研究分担者  
なし
  - (3) 連携研究者  
なし