

ダイヤモンド光伝導素子の高効率化とその応用研究

電子工学専攻 米田研究室

永田 広明

1. 概要

テラヘルツ電磁波とは、周波数 $1\text{THz} = 10^{12}\text{Hz}$ 、波長 $300\ \mu\text{m}$ 付近で、光と電波の境界に位置する電磁波をいう（図1）。THz帯の周波数の電磁波は、1980年代にD.H.オーストンらのグループが光伝導素子からの発生に成功して以来、ガリウム・ヒ素化合物による光伝導素子の研究など多くの研究がなされている[1]。最近では超短パルスレーザー技術の発達により、チタンサファイアレーザーなど安価で安定したTWレベルの高強度の超短パルスレーザー光が得られるようになり、これをポンプ光とした非線形結晶による差周波法による方法や半導体の表面準位を利用した方法、或いは光伝導素子を利用した方法などが研究されてきている。このTHz電磁波は長波長という特性を活かして近年、医療、非破壊検査、高速通信などの多方面にわたる分野で科学的・技術的応用において関心が高まっており、特にガリウム・ヒ素(GaAs)化合物を用いた光伝導素子は、高速化、高出力化が可能なることからTHz光源への応用が期待されている[3]。本研究では、THz電磁波の高出力化を目的としている。この目的に最も適応するものとして、光伝導素子を用いる方法を選んでいる。

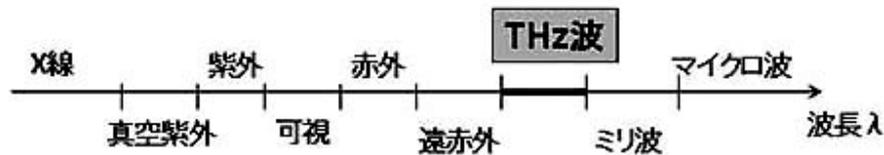


図1 THz電磁波の属する周波数帯

光伝導素子から放射されるTHz電磁波の強度は、ポンプ光照射によって半導体中に生成されたキャリアによる電流（光伝導電流）の時間微分により決定される。光伝導電流は一般に、半導体内でのキャリア濃度 n 、ドリフト移動度 μ 、印加電界強度 E を用いて、

$$J = ne\mu E \quad (1)$$

で表される。 μE の値にはフォノンとのカップリングによって物質固有の飽和値があり、 E の値はその物質の絶縁破壊強度によって決定される。また、その高出力化には生成されたキャリアを効率よく加速させることが必要となる。THz電磁波の出力強度のスケールリング則は(1.2)式で表される[4]。

$$E_{\text{THz}} = E_{\text{bias}} \frac{s_0}{(1 + \sqrt{s_0}) + s_0} \quad (2)$$

ここで、 E_{THz} は放射電界、 E_{bias} は印加電界強度で、 s_0 、 s_0 は表面光伝導度、自由空間のインピーダンス、 s_0 は誘電率である。この式から、出力THz波は印加電界強度に比例し、印加電界と出力電界の

強度が等しくなった時点で飽和が起こることがわかる。高強度を得るためには、素子に印加する電界強度を大きくすることが必要不可欠である。従来、光伝導素子としては前述のように GaAs が使用されてきたが、印加電界～放射電界で限界が来ることが提唱されている[3]。本研究では、THz 波放射源としてダイヤモンドを使用している。ダイヤモンドには下記のように他の物質には類を見ない様々な物理的に優れた特性を持っている。

- ・ バンドギャップエネルギーが大きい (5.5eV)
- ・ 硬い (機械的強度 ; 例えばトンネル切削用のカッターの刃など)
- ・ 抵抗性が高い
- ・ 熱伝導性が良い (半導体用ヒートシンク、高出力赤外線用窓材)
- ・ 絶縁破壊強度 (電界) が大きい

ここでダイヤモンドは 5.5eV というバンドギャップがあるため、高出力紫外長短パルスレーザーを生成する技術が必要である。チタンサファイアレーザーシステムでは基本波は赤外域にあるが、ピークパワーが高いため近年では LBO、BBO など非線形結晶の進歩により容易に 2 倍波、3 倍波を高効率で発生でき、紫外域の超短パルスレーザー光も安定に得られるようになった。ダイヤモンドを光伝導素子として使用することにより、従来のガリウム・ヒ素基板に比べて 2 桁以上大きな印加電界強度を放射源上で実現でき、これまでのところ、有効放射面積 10mm^2 から $E=1 \times 10^5\text{V/cm}$ の電界強度で 10nJ、1.5ps の電磁波の放射が確認されている。

ここで使用されたダイヤモンド素子は、平均粒径 ~ 10 μm というものであった。そこで、有効放射面積を大きくし、より大きな出力を得るため、パルス幅 ~ 300fs、12mJ/pulse \times 6 本というポンプ光をつくり、これまでの 10mm^2 を 10 倍以上上回る 128mm^2 という有効放射面積を高強度で励起することが可能となった。この高電界印加ダイヤモンドとテラヘルツ波のコヒーレント加算を併せ持つ高出力化システムにより、これまでの 10nJ を大きく上回る 100 μJ 程度のエネルギーを得られることが予想されている[4]。

これに加えて、(1) 式における各パラメータを大きくすることで更に高強度の THz 電磁波を放出することを目指した。印加電界 E については上記方法により高強度化を試みたが、ドリフト移動度 μ 及びキャリア濃度 n を次に述べる方法で大きくする。厚みを従来の 10 μm から 300 μm (平均粒径 150 ~ 200 μm) に増したダイヤモンド素子を使用した。粒径を大きくすることで移動度が大きくなる。次に、ダイヤモンド素子の厚みを増して粒界が大きくなったことで結晶性の向上により、最短波長超短パルスレーザーである KrF レーザーの波長では素子の吸収率が低下するというデメリットを克服しなければならぬ。そこで、(1) 式中のキャリア濃度 n の値を大きくしたい。まず、2 光子吸収を利用した。更に不純物をダイヤモンド中にドーピングする。本研究では Li をドーピングさせ、キャリア生成効率の改善を行った。

2 . 移動度 μ の向上

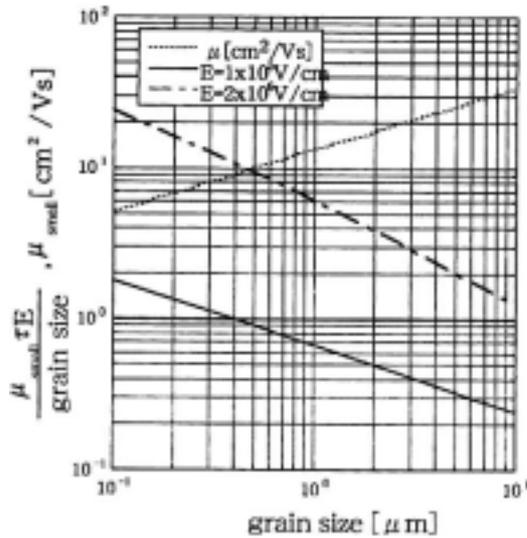


図2 . 移動度の粒径スケールング

放射電磁波の強度は素子に流れる電流 J の時間微分に比例しており、電流 J は、 $J = ne \mu E$ で表されることは既に述べた。ここで、多結晶CVDダイヤモンドの場合、単結晶ダイヤモンドと違い多結晶性からくる粒界(grain boundary)が存在することに注目しなければならない。ドリフト移動度の粒径(grain size)依存性は図2(点線)のようになっている。このグラフを式で表すと(3)式のようなになる。

$$\mu = \frac{30\text{cm}^2}{\text{Vs}} \cdot (d/10\mu\text{m})^{0.43} \quad (3)$$

上式から、粒径が増すにつれてドリフト移動度が大きくなることが明らかである。粒径が小さくなると粒界の影響が大きくなり、光伝導特性が低下す

ることによるものである。そこで、ダイヤモンド素子の厚みを増して粒径が従来の $10 \mu\text{m}$ から $150 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度として、ドリフト移動度 μ を大きくしたい。このダイヤモンド素子を用いて光伝導特性を測定したのが図3である。

この図は、照射光強度を一定にして印加電界強度を変化させたときに素子に流れる光伝導電流の大きさの変化を測定した様子を表している。図から、 $E > 6 \times 10^4 [\text{V/cm}]$ あたりで光伝導電流は飽和している。ダイヤモンドの飽和ドリフト速度は $V_{\text{sat}} = 2 \times 10^7 [\text{cm/s}]$ で、 $\mu E_{\text{sat}} = V_{\text{sat}}$ より、移動度 μ は、 $\mu = V_{\text{sat}} / E_{\text{sat}} = 330 [\text{cm}^2/\text{Vs}]$ となる。従来使用された粒径 $\sim 10 \mu\text{m}$ のダイヤモンド ($\sim 30 \text{cm}^2/\text{Vs}$) と比較して1桁改善されたといえる。

ここで、空気中の絶縁破壊強度が $10 [\text{kV/cm}]$ であることを考慮すると、素子に高電界を印加するのは困難になる。そこで、ダイヤモンド素子にはアルミニウム電極をフォトエッチング技術により図4のように電極を施した。一方の面を+ (プラス) 極、もう一方を- (マイナス) 極として電圧を印加する。各々の電極対にかかる電界の和をとることで、素子全体として大きな印加電界強度を得る。ここで、THz 電磁波を測定しようとする場合には、隣り合うギャップには符号の異なる電界が印加されるため、遠視野領域では放射電界のキャンセルが起きてしまう。そのため、マスクをレーザー照射側に入れ、片側電界のみを放射に寄与させるようにする。

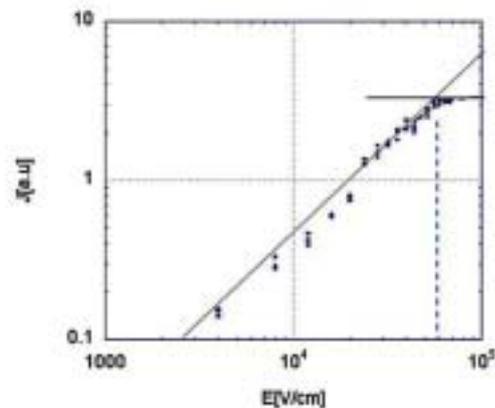


図3 . 光伝導電流の印加電界依存性

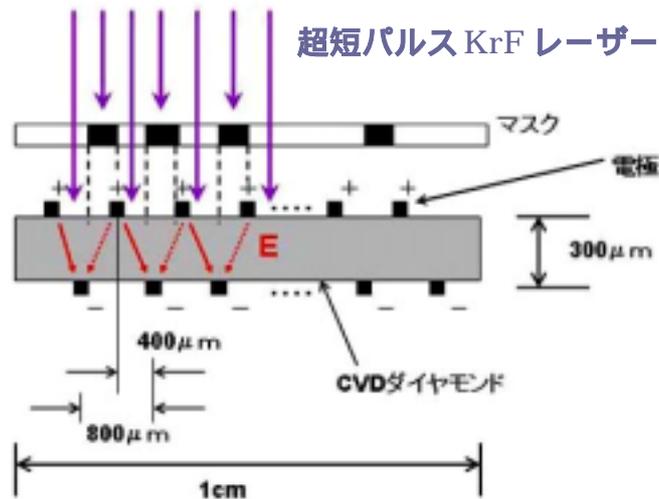


図4 . ダイヤモンド THz エミッタの電極

次に、図4のように電極を施したことで、ダイヤモンド薄板の方向による粒界の影響を調べなければならぬ。そこで、図5、図6のような2つのサンプルを用意してそれぞれの光伝導特性を測定した。結果は図7のようになり、各々のグラフがほぼ同一の直線上に乗っていることから、いずれの場合も移動度は変わらず、方向による粒界の影響はないことが明らかとなった。

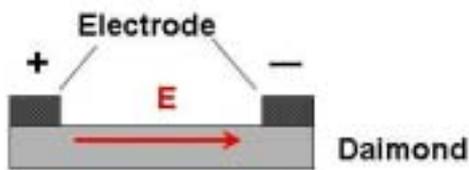


図5 . サンプル

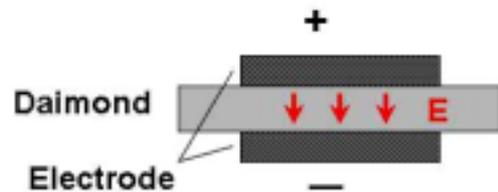


図6 . サンプル

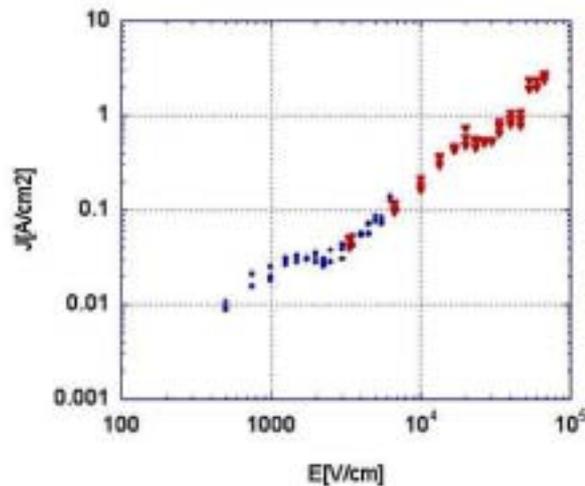


図7 . サンプル , の光伝導電流の印加電界依存性
(青 : サンプル 、 赤 : サンプル)

3 . キャリア濃度 n の向上

これまで、移動度を大きくすることで光伝導電流を大きくし、THz 電磁波の放射強度を増すことを考えてきた。しかし、粒径を大きくしたことで結晶構造が単純化したため、KrF レーザ光に対してその吸収効率が低下してしまう。また、ダイヤモンドの飽和ドリフト速度が $V_{sat} = 2 \times 10^7 \text{cm/s}$ で制限されてしまうため、移動度による THz 電磁波の高強度化には限界がある。そこで、更に高強度化を目指すためにはダイヤモンド素子内部に生成するキャリアの量を多くすることが考えられる。

3 . 1 2光子吸収

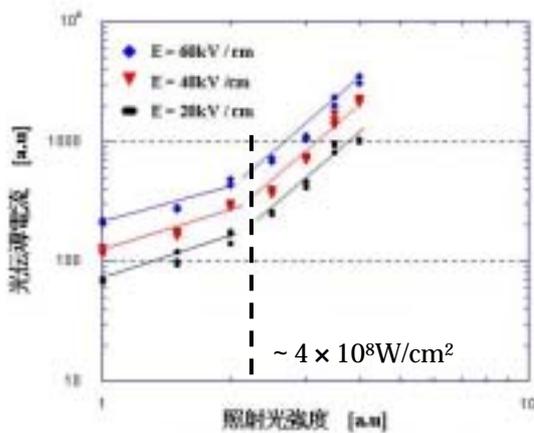


図8 . 光伝導電流の照射光強度依存性

図4のダイヤモンド素子において、印加電界強度を固定し、フィルタによりダイヤモンド表面に照射するポンプ光の強度を変化させて、そのときの光伝導電流の変化の様子を調べる。結果は図8のようになった。ここで、およそ $4 \times 10^8 \text{W/cm}^2$ の照射光強度で非線形現象が起こっている。これは2光子吸収によるものと考えられ、ダイヤモンドの光学的破壊限界 ($\sim 10^{12} \text{W/cm}^2$) を大きく下回る強度で2光子吸収を実現している。一般に光吸収において角振動数 ω の光を吸収して $\hbar\omega$ (ただし、 $\hbar = h/2\pi$ とする) だけエネルギーの高い状態に移るが、強い光を用いた場合は $\hbar\omega_1, \hbar\omega_2, \hbar\omega_3, \dots, \hbar\omega_n$ という

う n 個の光を同時に吸収して $\hbar(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 + \dots + \omega_n)$ だけ高いエネルギー状態に遷移する場合があります、このことを“多光子吸収”という。また、特に $n=2$ の場合、“2光子吸収”と呼ぶ。その起こる確率は2つの光の強度の積に比例する。

3 . 2 Liドーピングによる吸収効率の改善

2光子吸収では、照射する KrF ビーム強度をコントロールすることでフォトン キャリアへの変換効率をアップさせた。今度は光伝導素子そのものを改良することで変換効率を向上させたい。そこで、ダイヤモンド素子に不純物(Li)をドーピングさせた。ドーピングの方法としてはまず、 Li_2O_3 の粉末をるつぼに入れ、その中にダイヤモンド薄板を埋める。これを 500 °C の高温炉で約2日間加熱し、取出したダイヤモンドを超音波で洗浄する。このような方法で Li をドーピングしたダイヤモンドとドーピングしていないものとで印加電界 E に対する光伝導電流 J の変化の様子をグラフにしたのが図9である。赤線がドーピングしたサンプル、緑線がドーピングしていないサンプルである。Liドーピングによって光伝導特性は明らかに向上している。

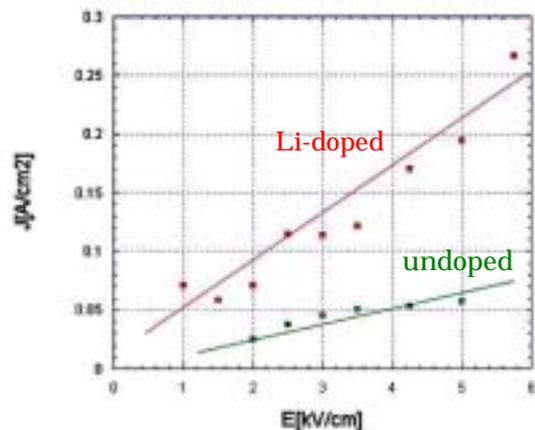


図9 .Li をドーピングしたダイヤモンドとドーピングしていないものの光伝導特性の比較

4 .THz 電磁波の発生と観測

以上、粒径を大きくしたダイヤモンド薄板の光伝導特性を様々な観点から測定した結果、従来の薄膜ダイヤモンドに比べて特性が向上しており、THz 電磁波の高強度化に期待を持てることがわかった。発生した THz 電磁波の観測は、電気光学効果を利用し、ポンププローブ法で観測する。方法としては、THz 電磁波を軸外し放物面鏡で集光させ電気光学結晶である ZnTe に入射させる。これをプローブ光でスキャンして THz 電磁波の時間波形を見る。

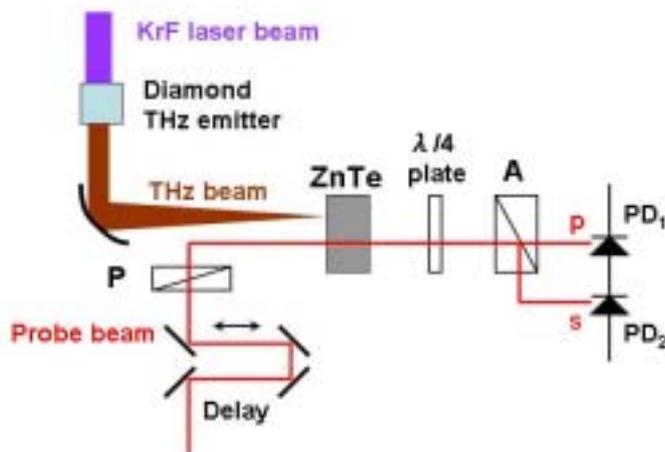


図 1 0 . THz 電磁波観測の光学系

5 . まとめ、今後の課題

以上、見てきたとおり光伝導電流 $J = ne \mu E$ の式をベースとして各パラメータを大きくすることでダイヤモンド素子の光伝導特性を向上させ、THz 電磁波の高強度化をする上でその方向性を確認できた。今後は THz 電磁波の発生・観測を行うことが課題となる。また、更に有効放射面積を大きくし、より大きな出力を得るため、パルス幅 ~ 300fs、12mJ/pulse × 6 本というポンプ光をつくるシステムの開発により、これまでの 10mm² を 10 倍以上上回る 128mm² という有効放射面積を高強度で励起することが可能となったことで、この高電界印加ダイヤモンドとテラヘルツ波のコヒーレント加算を併せ持つ高出力化システムにより、これまでの 10nJ を大きく上回る 100 μJ 程度のエネルギーを得られること期待できる。

参考文献

- [1] D.H.Auston, K.P.Cheung and P.R.Smith : Appl. Phys.Lett., 45, 284(1984)
- [2] 川瀬晃道ほか : パラメトリック発振による波長可変テラヘルツ電磁波の発生 : レーザー研究 (1998)
- [3] G.Rodriguez and A.J.Taylor : Opt.Lett., vol.21, No.14, 1046(1996)
- [4] Hitoki Yoneda, Kazutatsu Tokuyama, Ken-ichi Ueda, Hironori Yamamoto and Kazuhiro Baba : Appl.Opt., vol.40, No36, 6733(2001)