

論文の内容の要旨

論文題目 誘電分散解析に基づく時間波形処理を用いたテラヘルツ分光計測法の開拓

氏名 井野 雄介

周波数 1 兆 Hz、波長 0.3mm であり光と電波の中間に当たる電磁波をテラヘルツ(THz)電磁波と呼ぶ。ドーピング半導体・誘電体・超伝導体・生体物質と言った様々な物質がこの電磁波に対して興味深い応答を示す事に加え、この領域はエレクトロニクス・フォトンクス双方の極限に当たる事。従って基礎研究・応用の両面においてこの電磁波は早くから注目されていたが、これまでは良好な光源が無かった為に研究全般が立ち遅れていた。1984 年に Auston らは、フェムト秒レーザーを半導体光伝導スイッチに照射して THz 電磁波を発生させ、空中伝播させた後に観測する事に成功した。以後、フェムト秒パルスレーザーを用いて広帯域・高輝度なテラヘルツ電磁波を発生させる技術が発達し、THz 電磁波を発生・検出する技術は整備されつつある。

今後更に THz 技術を発達させ、基礎研究や産業において様々な応用に堪えるようにするためには、検出した THz 電磁波信号を処理し、効率よく情報を抽出できるような手法を確立することが重要である。その際に注目すべきは、このような THz 電磁波パルスを検出する技術においては、電場時間波形の時間発展を直接観測することが可能である、と言う点である。得られた時間波形を Fourier 変換することにより、周波数成分ごとに振幅と位相が同時に得られる。従ってこの電磁波パルスを用いて透過あるいは反射測定を行うことで物質の応答関数を振幅・位相を同時に観測することができ、複素屈折率の実部・虚部を同時に決定することができる。可視光の測定においては通常振幅のみ得られることと比べると、時間波形測定の持つメリットは極めて大きい。このような物質の測定法を THz 時間領域分光(THz-TDS)と呼ぶ。上述したように THz 電磁波は様々な物質と強く相互作用するので、期待される THz-TDS の用途は極めて広い。THz 波発生・検出技術の進展と共に、THz-TDS は信頼性の高い分析ツールとして広く利用されるようになったが、依然としていくつかの解決すべき課題を抱えている。第一に、THz-TDS には時間波形を得られると言う莫大な長所があるものの、現状ではその特性を最大限に活用しているとは言い難い。また、信号において波長が可視光に比べ 3 桁程度大きい故に、試料の構造・実験系の配置など試料内部の情報とは無関係な成分が信号に混入している恐れが大きく、試料の所望な情報を的確に抽出する手法の構築が不可欠である。更に、THz 電磁波パルスの帯域はそのキャリア周波数と同程度に達しており、周波数情報に関する解釈を厳密に行う為には注意深い取り扱いが必要である。

以上の問題を鑑み、本研究においては THz 電磁波パルスの信号処理に誘電分散解析を応用し、試料に関する情報を効率よく検出する方法の構築を目指した。具体的には、THz 時間領域反射測定において試料反射面の位置不確定性に伴う位相成分を、測定した信号の有する解析性を用いて抽出するアルゴリズムを開発した。またこの方法をイメージング測定に応用し、試料表面の形状と物質分布を同時に抽出する測定スキームを開発した。更に THz 電磁波パルスの偏光自由度を活用して、異方性媒質の誘電率テンソルを決定する測定・解析法の構築を行った。

まず、THz 時間領域反射測定において問題となる試料表面位置不確定性に起因する位相誤差を、因果律やエントロピー最大の原理などを用いて抽出するアルゴリズムの構築を行った。THz 波を用いて反射測定を行う際は、試料と参照試料各々の表面からの計測された反射波を比較して複素反射係数を計算するが、その際に試料と参照試料の反射面が一致していることが前提となる。もし両者が食い違っていれば、計算された複素反射係数の位相には周波数に比例する系統的な誤差成分(以降、位置成分と称する)が含まれてしまう。位置成分は解析を行ううえで極めて大きな障害となるため、これを取り除く手法の開発が不可欠である。複素反射係数の振幅と位相は共にある物理現象の結果として得られるので、互いに独立ではなく解析的な従属関係を形成する。これを誘電分散関係と呼ぶ。もし位相に位置成分が混入していれば、位相のみが振幅に独立に変化したことになるので、誘電分散関係は破壊される。本研究においてはこの点に着目し、誘電分散関係を調べることにより、位置成分の有無を検出することを目指した。

まず因果律に注目した。これは、過去に起こった出来事の結果として現在における信号の値が決まる、と言う原則を意味するが、この原則から複素反射係数の振幅スペクトルを解析的に変換して位相スペクトルを得る(あるいは位相スペクトルから振幅スペクトルを得る)為の関係式が導かれる。これを Kramers-Kronig の関係と呼び、光学測定では盛んに利用されているが、その計算には周波数空間全域におけるスペクトルの値が必要であり、実験で得られる有限区間のみのスペクトルで計算を行うと誤差が生じてしまう、と言う問題がある。この問題を避けるために、振幅スペクトルに加えて位相スペクトルの値をある周波数 1 点で得ることさえできれば、有限区間の振幅スペクトルからであっても誤差が少なく位相スペクトルを再現できることが示された。これを Singly-subtractive Kramers-Kronig 関係式(SSKK)と呼ぶ。この SSKK を位置位相の問題に適用した。その結果、測定された位相が正しい場合には SSKK により位相から計算された振幅スペクトルは測定された振幅と良い一致を示すものの、位置成分が含まれている場合には、SSKK により計算された振幅は測定されたスペクトルから系統的にずれることが示された。このことを用いれば、試料表面の反射面位置を試料の誘電応答とは独立に抽出することが可能である。実際に n 型半導体 InAs の THz 領域複素反射スペ

クトルをこのアルゴリズムを用いて解析し、0.01mm 程度の位置のずれを抽出して試料の誘電応答を決定することができた。

また、振幅を用いて SSKK 演算を行うと数値計算が不安定になる場合があることを考慮し、より安定な複素反射係数の実部と虚部を用いた Kramers-Kronig 演算を用いることで、同様に位置成分を抽出できることを示した。更に、複素反射係数スペクトルのエントロピーが最大になることを要請することにより、測定した位相を試料の誘電応答と相関がある成分と無相関な成分(誤差位相)に分離するアルゴリズムを開発した。位置成分がない場合誤差位相は変化に乏しい関数であるので、位置のずれがある場合には位置成分と誤差位相は殆ど等しい値となってしまうため、位置のずれを評価することができる。この方法で先ほどと同じ n 型 InAs の複素反射スペクトルを解析し、誘電応答と位置成分を分離することに成功した。

以上述べた誘電分散解析を用いた位置成分の除去アルゴリズムにおいて、除去可能な誤差の理論的な最小限界値は、解析するスペクトルの構造に依存する。もしスペクトルが共鳴構造を十分に含んでいれば、検出限界値は位置のずれに換算して $1\mu\text{m}$ を下回る。しかしスペクトルが共鳴構造を部分的にしか含んでいない場合、検出限界は $10\mu\text{m}$ 程度にまで悪化する。

これらの位相解析アルゴリズムを不均一な試料に応用すると、試料の各点に於いて誘電応答と反射面の位置を同時に決定する事が可能になる。これを試料上全点について行くと、試料における物質の分布と表面の形状に関する情報が同時に得られる。この測定法を金属-半導体混成試料に対して適用した。その結果、試料の表面形状を正しく抽出し、表面形状を 0.05 mm の精度で決定する事に成功した。この精度は、実験条件を改善する事によりアルゴリズムで決まる限界まで改善される事が期待される。また物質上各点に置ける反射スペクトルについて、各々の物質の特徴が反映されている事を確認した。

更に、THz 電磁パルスには偏光の自由度が有るが、この偏光の自由度と時間波形情報による位相の情報を組み合わせる事によって、異方性を持つ試料の誘電テンソルを決定する事が可能である。そこで THz 電磁波パルスが異方的な試料の界面で受ける波形変化を解析的に表現し、これを THz 電磁波パルス偏光測定と組み合わせる事により、試料の誘電テンソルの対角項・非対角項を実部・虚部同時に決定するアルゴリズムを開発した。この手法を n 型半導体磁気光学測定に応用し、磁場下における n 型半導体ホール効果の評価を行った。更に、THz 電磁波パルスの時間波形を測定している事に注目し、 1mrad に相当する微小な偏光回転角を検出する手法を開発した。

まとめると、本研究においては、まず THz 電磁波パルスを用いて時間領域反射測定を行う際に生じる、試料-参照試料間反射面位置のずれに伴う位相成分を、誘電分散解析を用いて試料の誘電応答から分離するアルゴリズムを開拓した。このアルゴリズムを用いて、実際の THz 領域複素反射スペクトルから位置成分を抽出する事に成功した。更にこの方法をイメージン

グ測定と組み合わせ、不均一試料の表面形状と物質の分布を同時に決定できる測定スキームの開発を行った。また THz 電磁パルスの偏光の自由度を活用して、異方的な試料を記述する誘電テンソルの対角・非対角成分を同時に検出する測定・解析アルゴリズムの開発を行った。本研究の成果は、材料やデバイスを非接触・非破壊で分析・評価する方法としての用途、生体物質を安全かつ非接触に検査する医療診断における用途、空港・港湾の荷物検査において金属・危険薬物等を形状も含めて検出する検査法としての用途等への応用が期待される。また本研究で開発されたアルゴリズムは、時間波形を用いた測定になら全て応用可能であるので、光パルス位相測定と組み合わせる事で新たな応用の可能性が見出されるであろう。