

# DAST 結晶を光源として用いたテラヘルツ時間領域分光による

## 誘電体薄膜の複素誘電率測定

金城 隆平<sup>1</sup>、竹家 啓<sup>1</sup>、川山 巖<sup>1</sup>、村上 博成<sup>1</sup>、松川 健<sup>2</sup>、高橋 義典<sup>2</sup>、吉村 政志<sup>2</sup>、  
北岡 康夫<sup>2</sup>、森 勇介<sup>2</sup>、佐々木 孝友<sup>2</sup>、斗内 政吉<sup>1</sup>

大阪大学レーザーエネルギー学研究所<sup>1</sup>

大阪大学大学院工学研究科<sup>2</sup>

### Measurement of thin film dielectric constant by time-domain Terahertz spectroscopy with DAST crystal as light source

R. Kinjo<sup>1</sup>, K. Takeya<sup>1</sup>, I. Kawayama<sup>1</sup>, H. Murakami<sup>1</sup>, T. Matsukawa<sup>2</sup>, Y. Yoshinori<sup>2</sup>, M. Yoshimura<sup>2</sup>,  
Y. Kitaoka<sup>2</sup>, Y. Mori<sup>2</sup>, T. Sasaki<sup>2</sup>, M. Tonouchi<sup>1</sup>

*Institute of Laser Engineering Osaka University<sup>1</sup>*

*Graduate School of Engineering, Osaka University<sup>2</sup>*

We measured dielectric dispersion of SrTiO<sub>3</sub> (STO) and SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT) by using time-domain terahertz spectroscopy (THz-TDS) with nonlinear organic optical crystal DAST as a terahertz source. Both real and imaginary part of dielectric constant of STO moderately increased with the increase in the frequency in measured region. The imaginary part of dielectric constant of SBT had two peaks at 0.9 THz and 2.2 THz. The 0.9 THz peak corresponded to soft mode and the 2.2 THz peak corresponded to rigid layer mode that has been observed with Raman scattering respectively.

#### 1. はじめに

近年、テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) は従来の手法では測定困難な 0.1~数 THz の領域における様々な物質の光学的性質を求める手法として広く使われるようになってきた[1-4]。この手法の特徴としては時間領域における電磁波波形を直接測定可能であり、その時間領域波形をフーリエ変換することにより位相と振幅の情報を同時に得ることができることがあげられる。そのため、従来の方法では Kramers-Kronig 変換を用いて間接的にしか得ることが出来なかった複素光学定数の実

部と虚部を近似なしに直接計算することが可能である。我々はこれまでもこの手法を用いて、多くの変異型強誘電体の母構造となるペロブスカイト構造を持つ SrTiO<sub>3</sub> (STO)や、主に不揮発性メモリ材料としての研究が盛んであるが、高周波デバイス材料としての研究が不十分であった SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> (SBT)などの複素誘電率の測定を行ってきた[5, 6]。しかし従来の THz-TDS においては主に光伝導スイッチを光源とし、2~3THz までの測定が限界であった。本発表では光源に、高出力かつ広帯域なテラヘルツ電磁波の発生が可能であり、現在広く使われて

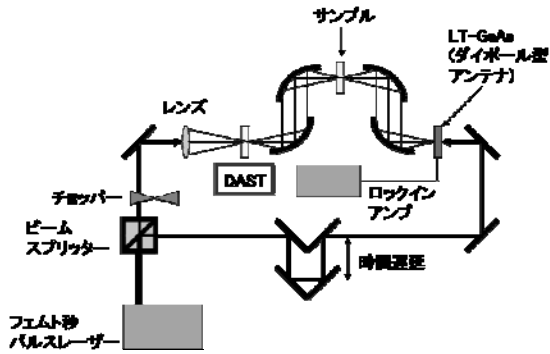


図 1 テラヘルツ時間領域分光システムの概略図

いるようになってきている非線形有機光学結晶 DAST を使用することにより、これまでより広帯域な測定によって複素誘電率の測定を行った。

## 2. 実験方法

図 1 は本実験で用いた THz-TDS システムの概略図である。レーザー光源には中心波長  $1.5\mu\text{m}$ 、パルス幅約  $70\text{fs}$ 、繰り返し周波数  $42\text{MHz}$  のエルビウムドープファイバーレーザーを用いた。レーザー光は図 1 に示されるように、ビームスプリッターによってテラヘルツ電磁波を発生させるためのポンプ光とそれを検出するためのプローブ光に分けられる。ポンプ光はレンズで集光され、 $5\text{mm}$  角、厚さ  $1\text{mm}$  の DAST 結晶に入射し、主に光整流効果によりテラヘルツ電磁波が発生される。発生したテラヘルツ電磁波はサンプルを透過してディテクタで検出される。ディテクタには低温成長 GaAs の上に作製された光伝導スイッチを用いた。DAST に照射されたレーザーのパワーは  $20\text{mW}$ 、ディテクタに照射されたパワーは  $40\text{mW}$  であった。時間領域における基板のみの透過電磁波とその上に作製された薄膜の透過電磁波から、複素誘電率の実部  $\text{Re}(\epsilon)$

と虚部  $\text{Im}(\epsilon)$  が求められる[7]。今回試料として用いた STO 及び SBT 薄膜は MgO(100) 基板上に PLD 法によって作製されたものである。これらは X 線解析によりエピタキシャル成長をしていることを確認した。厚さについてはそれぞれの MgO 基板が  $500\mu\text{m}$ 、その上に堆積された STO 薄膜が  $1.045\mu\text{m}$ 、SBT 薄膜が  $3.6\mu\text{m}$  であった。

## 3. 実験結果と考察

図 2(a) は MgO 基板と STO 薄膜の透過電磁波の時間領域波形、図 2(b) は同じく MgO 基板と SBT 薄膜の透過電磁波の時間領域波形である。どちらも MgO 基板のみの透過電磁波と比較して、薄膜による波形の時間遅れと吸収による振幅の減衰が確認された。また、それぞれ  $19\text{ps}$  付近に小さな波形のピークが見られるが、これは基板内の多重反射によるものであり、今回の解析においては多重反射を考慮していないため、それより前の時間波形のみを用いて解析を行った。この時間波形をそれぞれフーリエ変換することにより、図(c)及び(d)のスペクトルが得られた。ここでフーリエ変換によって得られた MgO 及びその上に堆積された薄膜の透過スペクトルの振幅をそれぞれ  $E_{\text{MgO}}(\omega, \phi)$ 、 $E_{\text{Sample}}(\omega, \phi)$  とすると、規格化したサンプルの透過率  $T(\omega, \phi)$  は  $T(\omega, \phi) = E_{\text{Sample}}(\omega, \phi) / E_{\text{MgO}}(\omega, \phi)$  となり、MgO の多重反射を無視すると、以下のように表される。

$$T(\omega, \phi) = \frac{N_1(N_2 + 1) \exp\{-i(N_1\omega/c - \omega/c)d\}}{(N_1^2 - N_2) \exp(-i2N_1\omega d/c)},$$

ここで  $N_1$ 、 $N_2$  はそれぞれ薄膜と MgO 基板の複素屈折率、 $c$  は光の速度、 $d$  は薄膜の膜厚である。MgO の複素屈折率として  $N_2 =$

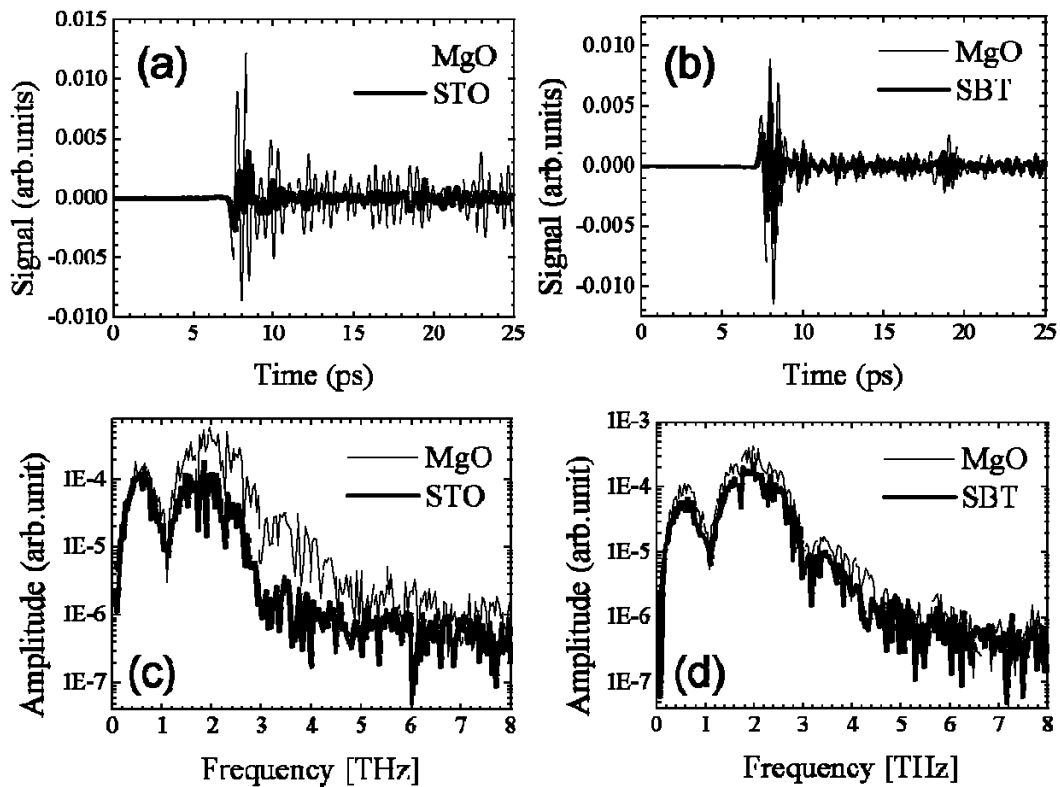


図2 それぞれ MgO 基板と(a)STO (b)SBT 薄膜の透過電磁波の時間領域波形。(c)、(d)はそれらをそれぞれフーリエ変換したスペクトル。

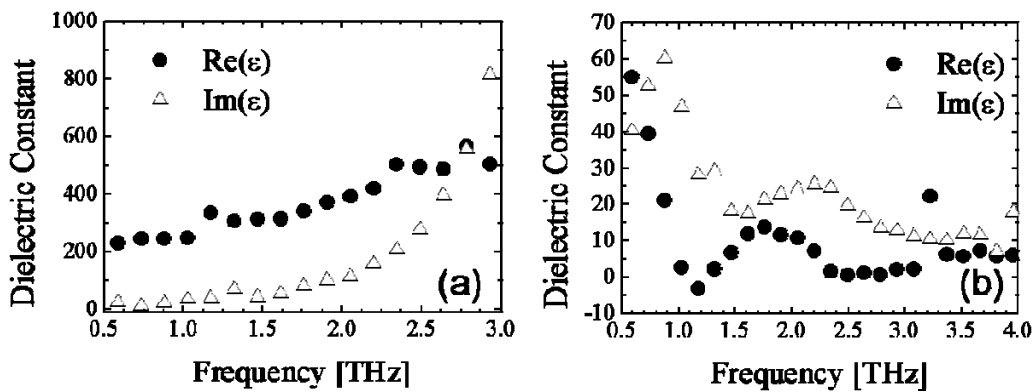


図3 それぞれ(a)STO (b)SBT 薄膜の複素誘電率の実部と虚部の誘電分散

3.17 - i0.0004 を用いて上式から数値的に複素屈折率  $N_1$  を求め、 $N_1^2 = \epsilon^*$  の関係から薄膜の複素誘電率  $\epsilon^*$  の実部  $\text{Re}(\epsilon)$  と虚部  $\text{Im}(\epsilon)$  をそれぞれ見積もった。求めた STO、SBT 薄膜それぞれの複素誘電率の誘電分散を図3に示す。図3(a)から STO 薄膜の複素誘電

率は実部、虚部ともに周波数が上がるにつれ穏やかに誘電率が上昇する様子が確認できた。STO は 3THz 付近に最も低い縦波光学モードを持つことが中性子散乱や遠赤外分光によって観測されており[8]、その影響を受け誘電率が上昇しているものと考え

られる。モードのピーク位置が高周波側にシフトしていることと、誘電率の値がバルク単結晶のものより小さくなっていることについては薄膜化により結晶性が悪くなっているためであると考えられる。一方、図 3(b)の SBT の複素誘電率については、その虚部に関し 0.9THz において鋭いピークと 2.2THz において幅の広いピークが観測された。このような誘電分散は小島らによって測定されたラマン散乱における測定結果[9, 10]とよく一致している。2.2THz におけるピークは彼らが観測した、Bi 系強誘電体において特徴的なリジッドレイヤーモードに対応するピークに一致している。0.9THz におけるピークは同じく彼らによって観察されている、変異型強誘電体を特徴付けるソフトモードに対応するピークと一致している。SBT の複素誘電率実部において、3.2THz にピークがあるように見えるが、これはこの周波数付近において光源として使用した DAST 自身の THz に対する吸収ピークに起因したものと考えている。

### 3. まとめ

DAST 結晶を光源とした THz-TDS により、STO 及び SBT 薄膜の複素誘電率を測定した。STO については複素誘電率の実部、虚部ともに穏やかに増加し、3THz 付近に存在するソフトモードのピークの影響を受けていると考えられる。SBT については変異型強誘電体において特徴的なソフトモード、Bi 系強誘電体において報告されているリジッドレイヤーモードに起因すると考えられるピークをそれぞれ観測した。今後、測定方法や計算手法・精度を改善することおよび温度可変システムで計測を行うことにより、

テラヘルツ領域の誘電物性を明らかにしていきたい。

### 参考文献

- [1] D. Grischkowsky and S. Keiding, Appl. Phys. Lett. **57** 1055 (1990)
- [2] D. Grischkowsky, *et al.*, J. Opt. Soc. Am. **B7** 2006 (1990)
- [3] I. Wilke, *et al.*, J. Appl. Phys. **87** 2984 (2000)
- [4] T. Kiwa and M. Tonouchi, Jpn. J. Appl. Phys. **40** L38 (2001)
- [5] M. Misra, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **87** 182909 (2005)
- [6] I. Kawayama, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. Part1 **11B** 6803 (2002)
- [7] N. Kida *et al.*, Phys. Rev. **B62** R11 965 (2000)
- [8] R. A. Cowley, Phys. Rev. Lett. **9** 4 159 (1962)
- [9] S. Kojima, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **33** 5559 (1994)
- [10] S. Kojima and S. Shimada, Physica B **10** 617 (1996)