The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Development of a Parallel Plate Waveguide Terahertz Spectroscopy System for the Evaluation of Ultrathin Conductive Films
Author(s)	Razanoelina, Manjakavahoaka
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/55963
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name (RAZANOELINA Manjakavahoaka)	
Title	**Development of a Parallel Plate Waveguide Terahertz Spectroscopy System for the Evaluation of Ultrathin Conductive Films** **(導電性極薄膜評価のための平行平板導波路型テラヘルツ分光システムの開発)**

Abstract of Thesis

Development of techniques for characterization of extremely thin films is an important challenge in terahertz (THz) science and applications. Spectroscopic measurements of materials on the nanometer scale or of atomic layer thickness (2D materials) require a sufficient terahertz wave-matter interaction length, which is challenging to achieve in conventional transmission geometry. Waveguide-based THz spectroscopy offers an alternative method to overcome this problem. In this work, we investigate a new parallel-plate waveguide (PPWG) technique for measuring dielectric properties of ultrathin conductive films, in which we mount the thin-film sample at the center of the waveguide.

First, we describe in details the theory of THz wave propagation in parallel plate waveguide with conductive layer located halfway between the plates. We have derived the dispersion equations for transverse magnetic (TM) and transverse electric (TE) modes which are utilized for dielectric parameters extraction. The derivation of these dispersion equations is the main theoretical contribution in PPWG approach in THz time domain spectroscopy (TDS). We also extended the parameters extraction in case of single mode propagation to multimode propagation. Second, we present the THz-TDS experimental system used during the realization of this work. The experimental setup is a homemade system based on transmission type THz-TDS. The PPWG is incorporated into the experimental system in a straightforward manner.

The THz-PPWG-TDS technique is first applied to a series of gold films exhibiting a thickness dependence electromagnetic properties. This application aims to demonstrate the possibilities as well as the limitations of the technique. In contrast to other waveguide methods, our approach enables comparison of the material response with different electromagnetic field distribution without significantly changing the experimental setup. In particular, we show that the TE mode offers a better sensitivity than TM mode for characterization of 2D conductive materials.

The second application focus on probing low density carriers in a single atomic layer. Here, the sample used is graphene which is a real 2D material. I demonstrate that a carrier density of $\sim 2 \times 10^{11}$ cm^{-2}, which induces less than 1% absorption in conventional THz transmission spectroscopy, exhibits ~30% absorption in this waveguide geometry. The amount of absorption exponentially increases with both the sheet conductivity and the waveguide length. Therefore, the minimum detectable conductivity of this method sensitively increases by simply increasing the length of the waveguide along which the THz wave propagates, enabling us to detect low-conductivity carriers in a straightforward, macroscopic configuration that is compatible with any standard time-domain THz spectroscopy setup. These results are promising for further studies of charge carriers in a diverse range of emerging 2D materials.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名	（RAZANOELINA Manjakavahoaka）	
論文審査担当者	（職）	氏　名
	主 査　教 授	斗内　政吉
	副 査　教 授	伊藤　利道
	副 査　准教授	村上　博成
	副 査　准教授	川山　　巌
	副 査　教 授	尾崎　雅則
	副 査　教 授	森　　勇介
	副 査　教 授	片山　光浩
	副 査　教 授	八木　哲也
	副 査　教 授	栖原　敏明
	副 査　教 授	近藤　正彦
	副 査　教 授	森　　伸也

論文審査の結果の要旨

周波数が 1THz 付近のテラヘルツ(THz)電磁波は、分光計測に適した光源や検出器の開発が困難であったため、長年、未開拓電磁波と呼ばれていたが、THz 時間領域分光法(THz-TDS)と呼ばれるレーザー分光法の開発が契機となり、THz 周波数領域の分光やその応用研究が飛躍的に進展した。現在では、THz-TDS をベースとした分光技術を用いることにより、それまで計測が困難であった数 meV 程度の低エネルギー領域の素励起やそのダイナミクスを直接計測することが可能となっている。

一方、グラフェンをはじめとする二次元電子材料はその特異な物性から、次世代デバイス材料としても期待が大きく、研開発究が活発化している。このような、2 次元薄膜材料の THz 周波数領域の物性評価は基礎物理およびデバイス応用の両者において非常に重要な課題であるが、このような 2 次元薄膜材料は、膜面に垂直な方向から THz 波を照射する通常の透過配置では THz 波との相互作用長が非常に短くなるため、その特性を正確に計測することは困難であった。本論文では、このような 2 次元薄膜材料のテラヘルツ分光計測を可能とするため、平行平板導波路(PPWG)を組み込んだ新規な THz-TDS システムを開発した。PPWG を導入することにより、試料平面と平行に THz 波を伝搬させることが可能となり、従来の透過配置にくらべてテラヘルツ波と 2 次元薄膜試料との相互作用長を劇的に増加させることが可能となった。また、電磁波の電界が試料平面と平行な TE 波と垂直な TM 波をそれぞれ計測することにより、試料の異方性や電界と磁界の応答を分離して計測可能であり、THz-TDS による物性計測に新たな可能性を切り開いた。本研究では、PPWG を用いた導電性極薄膜の計測・解析を行うための計算式の導出、システムの構築およびその有用性の検証を一貫して行っている。試料としては、Au 極薄膜、グラフェンおよびメタマテリアル薄膜を用いている。本論文はこれらの研究結果をまとめたものであり、得られた主たる研究成果を以下に要約する。

(1) PPWG を用いた THz-TDS 計測により、導電性 2 次元薄膜材料を計測するための計算式を導出した。PPWG を用いた THz-TDS の先行研究はあるが、それらは PPWG を構成する金属プレート上に絶縁性の試料を設置し測定するものであった。この配置では、通常 PPWG を伝播する TM モードと試料のカップリングを利用して計測を行うが、金属プレート直近に試料があるため、導電性材料を測定することは困難であった。そこで、本論文では、PPWG のギャップの中心に導電性 2 次元薄膜を絶縁性基板で挟み込む形で保持し、導電性薄膜の計測を可能とした。このような

配置で、PPWG 中を伝搬する THz 波の TM および TE モードの伝搬式を導き、導電性 2 次元薄膜の厚さが THz 波の波長および侵入長に比べて十分短い場合の薄膜の光学伝導度を導出する式を導いた。

(2) 実際に PPWG 型 THz-TDS システムを構築し、Au の極薄膜を測定して、本計測システムが導電性 2 次元薄膜に対して有効に機能するか検証した。試料として、膜厚が 180nm、8nm、4nm の Au 極薄膜を MgO(100)基板に蒸着し、この Au 薄膜を 2 枚の MgO 基板で挟み込み、PPWG のギャップ内に挿入することにより、ギャップの中間位置に Au 薄膜が保持される。このような配置で、THz 波の偏光方向を制御することにより、TM 波および TE 波を用いた Au 薄膜の分光計測を行った。また、同様の Au 薄膜を通常の透過型 THz-TDS で計測し、PPWG 型 THz-TDS で得られた結果と比較した。その結果、導出した理論式から予想されたように、TM 波にくらべて TE 波が Au 極薄膜と強く相互作用するため、正確な分光計測に適していることを実験的に示した。また、PPWG 型 THz-TDS と透過型 THz-TDS で得られた結果に対し、ドルーデ・スミスモデルを用いてフィッティングを行い、キャリア密度や緩和時間を見積もった。その結果、両者で得られた値はほぼ一致し、かつ Au 薄膜の膜厚が 4nm 以下の場合は、PPWG を用いることにより高い S/N 比での計測が可能であることを実証した。

(3) PPWG 型 THz-TDS をグラフェンやメタマテリアルの測定に適用し、これらの THz 周波数領域における電気的・磁気的特性を計測した。グラフェンは、空気中では通常、酸素の吸着によりホールドープされた状態となっている。本研究では、150℃以上にグラフェンを加熱し、吸着酸素を極力取り除いたキャリア密度が $10^{12}cm^{-3}$ 以下の低キャリア密度のグラフェンの電気伝導度を計測した。通常、低キャリア密度のグラフェンは、電磁波との相互作用が小さく、十分な精度で測定することは困難であるが、PPWG を用いることにより、S/N 比を大きく改善できることを示した。また、メタマテリアルの計測では、TE 波と TM 波のそれぞれで計測することにより、その電気的な応答と磁気的な応答を分離して計測することが可能であることを示した。

以上のように、本論文では、PPWG を THz-TDS に組み込むことにより、2 次元薄膜の THz 領域における電気特性や磁気特性を、高い S/N 比で計測可能であることを示している。この計測システムを用いることにより、今後、これまで計測不可能であった様々な 2 次元薄膜材料の計測が可能となると思われる。この成果は、THz-TDS が利用可能な新たな分野を開拓したと言え、THz 波分光計測および材料物性研究において大きな意義を持つものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。