

研究課題別評価書

1. 研究課題名

近接場 THz 光と電位の複合顕微鏡開発: 電子輸送の新観察法

2. 氏名

河野 行雄

3. 研究のねらい

テラヘルツ (THz) 電磁波を用いた技術、特に分光・イメージングは、無機・有機材料、生体系、宇宙・天体系など自然科学や産業界の多岐にわたる分野で強力な計測ツールとなることが期待されている。高性能なイメージングを達成する基本として、検出感度と空間分解能の向上が必須となることは、分野を問わない共通の課題である。ところが THz 電磁波は電波領域と光領域に挟まれた帯域に位置するという特殊事情のため、その発生や検出に関してエレクトロニクスとオプティクスという既存の2大技術がそのままでは活用しにくい。したがって、光源と検出器といった電磁波計測のための基本素子すら確立された定番と呼べるものがまだない。現在候補となるものはいくつか開発されているが、隣の帯域である可視光・近赤外光領域と比べると技術的な差は大きい。さらにイメージング技術においては、THz 波の波長 (0.1~1mm 程度) が可視光に比べて2, 3桁長いことから高い空間分解能が容易に得られないという大きな課題に直面している。以上を背景として本研究は、物質中電子の振る舞いの解明を目的とした、(1) 回折限界を超える高分解能を可能にする近接場 THz 光顕微鏡の開発、さらに計測の多次元化を目指した (2) 電位分布観測が可能な高分解能エレクトロメーターの開発、の2点を目指して行われた。

4. 研究成果

(1) カーボンナノチューブを用いた高感度・周波数可変テラヘルツ検出器の開発

カーボンナノチューブ (CNT) 量子ドットは、半導体量子ドットに比べて1電子帯電エネルギーが 10~50meV と1桁以上大きくなるため、単電子トランジスタとしてより高温で動作する。このデバイスに THz ガスレーザーを照射することで、電子輸送特性に与える効果を調べた。

図1に、THz 照射なし/ありに対する、CNT 量子ドットのドレイン電流のゲート電圧依存性 (クーロン振動) の結果を示す。THz 照射なしで本来電流が流れない領域 (クーロン閉塞状態) においても、THz 光を照射することによって新たなサテライト電流が発生することが分かった。さらに、THz 光の周波数を変えると、それに応じて電流ピークの位置が変化す

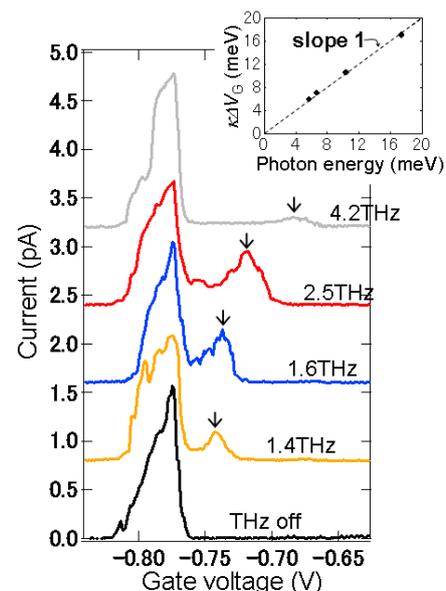


図1. THz 照射なし/ありに対するカーボンナノチューブのドレイン電流-ゲート電圧特性。挿入図は2つの電流ピーク間のエネルギー差のTHz光子エネルギー依存性。

ることが明らかにされた。図1挿入図に示したように、サテライト電流ピーク位置は、THz 光子エネルギーに対して線形の依存を示しており、これはまさしくCNTにおけるTHz 光子支援トンネルの直接的な証拠を与えている。検出器としての観点から言えば、周波数可変な THz 検出に成功したことを意味する。

(2)オールインワンチップ近接場テラヘルツ検出器の開発

回折限界を突破し、サブ波長分解能を可能にする近接場光学と呼ばれる技術がある。可視・近赤外光領域では、先鋭化された光ファイバによる微小開口あるいは STM/AFM 探針などによる微小散乱体を利用して、すでに確立された手法がある。ところがTHz 領域では、可視光と比較して波長が 2~3 桁長いこと、市販レベルでは高感度な検出器が存在しないこと等の理由から、その技術的確立は容易ではなく、チャレンジングな課題となっている。本研究では、異種半導体界面 2 次元電子ガス(2DEG)を用いて、新しい近接場(エバネッセント場)THz検出器の開発に成功した。

2.1 通常の近接場光イメージング

通常よく使用される近接場光イメージングは、図2に描いたように大きく開口型と無開口(散乱)型の2つに分けられる。前者は波長よりも小さな穴に光を通して検出器まで導く手法だが、穴を通過後に光の強度が急激に減少するという問題がある。後者は先鋭化された金属探針で近接場光(エバネッセント場)を散乱させ、検出器まで導く手法である。しかしながらこのやり方では、Far field 光が大きな背景光として検出器に入射するため、大きなバックグラウンド信号として現れることがある。これと近接場光との区別がしばしば問題になる。また、一般的に近接場光の強度は非常に弱いため、高感度な検出機構が必要となるが、開口型、無開口(散乱)型に限らず、検出器が離れた位置にあることがそれを妨げていた。

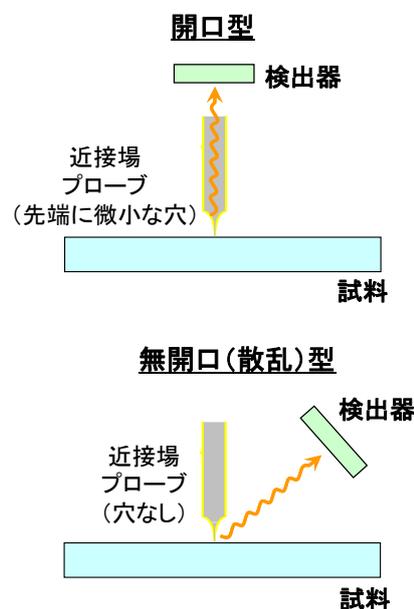


図2. 通常の近接場光イメージング(開口型と散乱型)。

2.2 開発した近接場THz検出器の素子構造

本研究では、従来のやり方から発想を変えて、近接場 THz 検出に必要な全ての要素—アパーチャー、平面プローブ、検出器—が半導体(GaAs/AlGaAs ヘテロ構造)ワンチップに集積化されたデバイスを作製した(図3)。近接場光測定の成否は、本来局在し

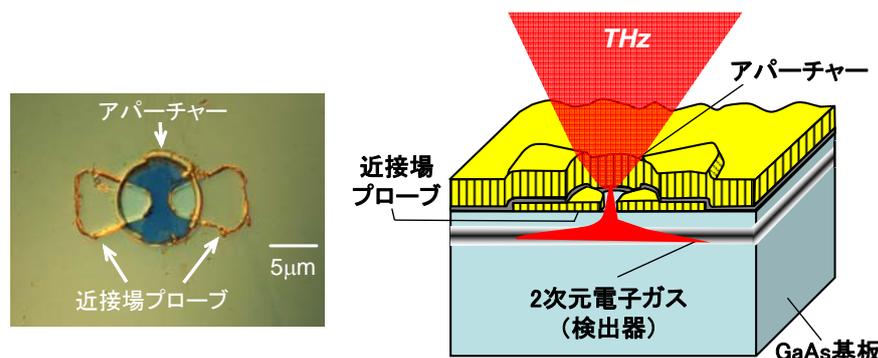


図3. 開発した近接場THzイメージング検出器の光学写真(左)と概念図(右)。

ており、かつ強度の弱い近接場光をいかに効率よく検出器まで導くかが鍵となる。今回作製したデバイスは以下の2つの工夫がなされている。1つ目は、アパーチャーのすぐ背後に存在する近接場平面プローブにより、波長よりも十分小さなサイズのアパーチャー部に発生した近接場光の電場分布(本来は一部分に局在している)をプローブ先端で遠方まで広げることができる。2つ目の工夫は、プローブによって空間的に引き延ばされた近接場光をすぐ間近(60nm 下)にある2D EG検出器で直接的に検出することができる。したがって、近接場THz光のみの高感度検出が可能となる。

2. 3 計算・実験結果:近接場THzイメージングの実証

上述の効果を検証するために、有限要素法によってアパーチャー近傍における THz 電磁波の電場分布を計算した(図4)。近接場プローブがないものとあるものとで比較を行った。この図に示されるように、前者では近接場光がアパーチャー部に局在している様子が見て取れる。一方後者では、近接場プローブの存在によって、本来アパーチャー部に局在する近接場光が空間的に広がっている様子が確認された。この効果により、近接場光と2DEGとの結合効率、言いかえるならば検出感度の増大が期待できる。

以上の計算結果に基づいて、THz 光透過/不透明領域(透過部の幅:50 μm 、不透明部の幅:80 μm)が規則的に並んだ試料に本検出デバイスを近接させながら走査することで、THz 光透過強度分布を測定した(図5)。アパーチャー+プローブでは明確なプロファイルが観測されているのに対して、アパーチャーのみの場合では信号が観測されていない。これは図4の計算結果で示された大きな電場引き込み効果を実証した結果である。

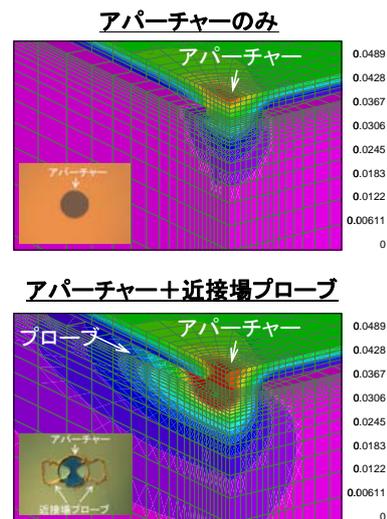


図4. 有限要素法によるアパーチャー近傍における THz 電場分布の計算結果。

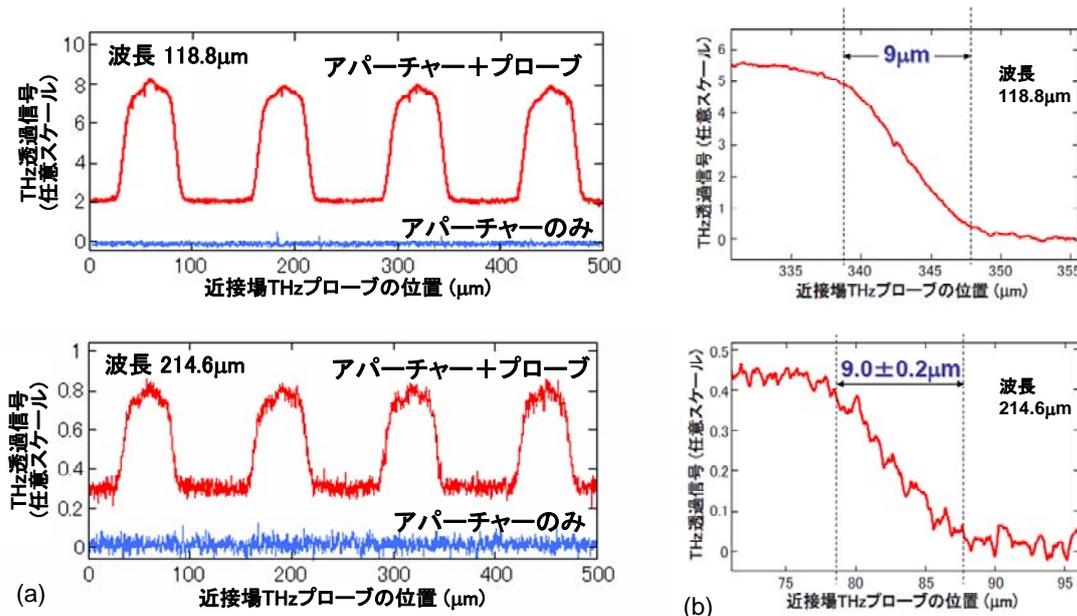


図5. 近接場 THz 検出器走査による THz 透過分布測定。(b)は(a)の一部を拡大したデータ。

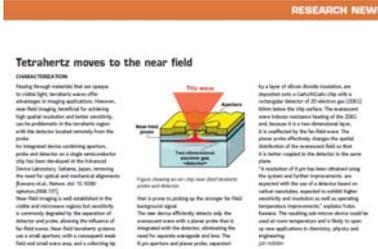
図5(a)の信号減衰部分を拡大することで、このデバイスが持つ空間分解能を見積もった(図5(b))ところ約9 μm であった。この値は、(1)照射THz光の波長に依存しない、(2)214.6 μm の波長に対して約24分の1に相当し、回折限界を突破している、(3)アパーチャー径(8 μm)にほぼ一致する。以上の3つの特徴は近接場特有の効果である。したがってここでの実験結果は、今回開発した素子によって近接場 THz イメージングが実現されたことを示している。

本研究で開発した素子は1つの半導体に必要な要素が集積化された“オールインワンチップ”構造であり、各要素間の光学的・機械的調整が不要で信頼性・実用性が高い。今後は、半導体デバイス検査、食品検査、基礎物性研究など多くの用途への普及が期待できる(図6に成果発表)。

**Nature Asia Materials
Research Highlight (10 Oct. 2008)**



**Materials Today
(Elsevier, UK)**

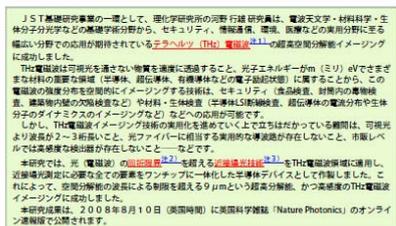


**日刊工業新聞
2008年12月9日**

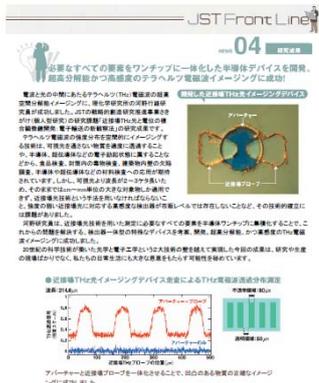


**JSTプレスリリース
2008年8月11日**

テラヘルツ電磁波の超高分解能画像化に成功
(セキュリティや材料・生体検査など画期的な新画像化技術に道)



JSTニュース 2008年10月号



- その他、以下で特集・紹介:
- 化学工業日報 (2008年8月11日朝刊)
- Laser Focus World Japan (2008年10月号)
- RIKEN NEWS (2008年11月号)
- RIKEN RESEARCH (2008年12月号)

図6. 開発した近接場 THz イメージングに関する成果発表。

(3) 開発した装置の応用を目指した研究: 単層グラフェンの THz 電磁波応答(ディラックフェルミオンの THz 共鳴)

単層グラフェンでは、キャリアが質量ゼロのディラックフェルミオンになり特異な物性を発現することから、世界中で大きな注目が寄せられている。グラフェンの磁場によるランダウ準位形成が通常の半導体とは著しく異なっており、準位間隔が遠赤外～中赤外(1~50THz 程度)の相当な広帯域にわたる。したがって、テラヘルツ電磁波をプローブとした分光やイメージング技術ならびに電位分布や電位揺らぎ分布観測技術を駆使することで、特異なランダウ準位の構造やディラックフェルミオンの時空間特性を探求することは大変興味深い。本研究で開発した2つの装置を適用する対象としては、格好の舞台である。本研究ではこれらの第一歩として、テラヘルツ電磁波との相互作用下におけるグラフェンの電気伝導特性を調べた。

図7に、テラヘルツ電磁波照射に対する電気抵抗変化の磁場依存性の結果を示す。グラフェン

2次元電子ガス(2DEG)と通常のGaAs/AlGaAs-2DEGとの比較を行った。GaAs-2DEGでは応答信号が観測されないのに対して、グラフェン 2DEGでは明瞭なピーク構造が観測されている。今回測定した磁場範囲 0-5Tにおいて、GaAs-2DEGの有効質量から見積もられるランダウ準位間エネルギーは 0-8.5meVである。したがって、それより大きな光子エネルギー(134meV)の電磁波吸収が生じないのは合理的な結果である。一方グラフェン 2DEGでは、キャリア速度を $\sim 1 \times 10^6$ m/s(文献値)と仮定すると、観測されたピークでの磁場値 2.2Tは、134meVの電磁波を吸収してランダウ準位指数 $n = -1 \rightarrow 2$ の遷移を起こす際の磁場値とよく一致する。以上から図7の結果は、テラヘルツ電磁波の共鳴吸収を通して、ディラックフェルミオンがフェルミ準位以上のランダウ準位に励起されたことを示していると理解できる。

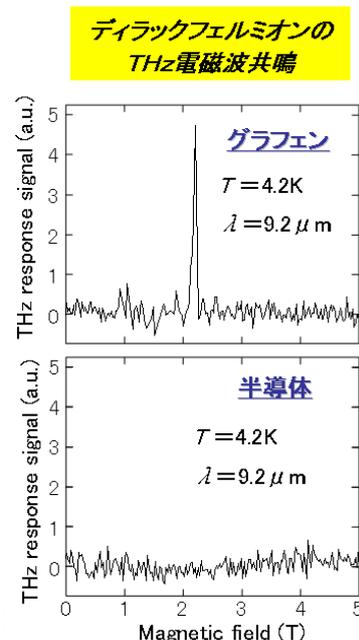


図7. グラフェン(上)と GaAs/AlGaAs(下)の THz 応答信号の磁場依存性。照射THz電磁波の波長は $9.2 \mu\text{m}$ 。

5. 自己評価

目標として掲げた大きな柱である2つの装置開発、(1)近接場THz顕微鏡ならびに要素技術としてのTHz検出器の開発、(2)高分解能エレクトロメーターの開発は、ほぼ達成した。ただし残された最後の期間で行う予定であった装置を応用した物質科学研究については、手掛け始めたところでプロジェクトが終了した。当然のことながら研究自体はここで終了するわけではない。装置のさらなる発展的開発にせよ、装置を応用した研究にせよ、さきがけ研究を行っていきながら蓄積されたアイデアがいくつかあり、それらの実現に向けてこれからも邁進する。

6. 研究総括の見解

近接場 THz光顕微鏡と電子の流れをマッピングする走査型電位計を開発し、それらを複合化した電子輸送の新たな観察法の研究である。半導体量子構造や高温超伝導体といった最先端物質の物性研究への応用を目指して要素技術の構築に挑戦した。主たる成果は次の2点である。

- ①カーボンナノチューブ量子ドットを THz検出素子として活用する試みで、極めて高感度でありかつ測定周波数をゲート電圧で制御することが可能な THz検出素子の開発に成功した。
- ②アパーチャー近傍の電磁波電場分布の計算結果から、アパーチャー、近接場プローブ、GaAs/AlGaAs半導体を一体化したオールインワンチップ検出器を開発し、THz光の回折限界を突破する $9 \mu\text{m}$ の分解能を確認した。

また、グラフェンの物性研究についても開発した本法の適用を試み、THz電磁波応答信号の磁場依存性に極めて興味深いデータを得ている。

これらの成果は 16 篇の原著論文、12 件の学会招待講演にまとめられている。また、平成 19 年に第 22 回応用物理学学会講演奨励賞、平成 20 年に第 2 回日本物理学会若手奨励賞、平成 21 年

平成 20 年度光科学技術研究振興財団研究表彰を受賞している。

独創的な研究成果とともに実用性向上への努力、応用対象となる新素材への適用検討などの幅広い取り組みも高く評価できる。近接場 THz 光と電位測定 of 複合顕微鏡を開発するという当初の目標には至らないが、この成果を応用する方向性は見えてきた。今後は、更に高感度化、高分解能化の限界に挑戦し、多くの応用分野で新材料の物性研究を加速することが期待される。

7. 今後の展開

(1) THz 検出器について

今後の改良点として、THz 検出信号の高感度な読み出し(単一電子ダイナミクスの計測が可能な量子ポイントコンタクト素子を CNT の間近に配置したハイブリッド構造の作製)、検出周波数精度と動作温度の向上(2重結合量子ドット構造を作製し、2つの量子ドットの離散準位間の電子遷移により検出)を計画している。

(2) THz イメージングについて

今回開発した近接場 THz 検出器は現時点でも多くの用途に使用できるが、材料科学や細胞科学などの分野では観察対象によってより高い空間分解能が要求される場合がある。本デバイスの空間分解能はアパーチャー径で決まるため、この径を小さくすれば空間分解能は向上する。ただしそれに伴ってエバネッセント場の強度が急激に減少するため、検出器の感度も同時に向上させる必要がある。そのための有望な策として、開発した CNT による検出器を利用することを計画している。この検出器は 2DEG のみの検出器よりもはるかに高感度である。このデバイス構造の改善によって、約 2 桁高い $0.1 \mu\text{m}$ の空間分解能が得られると見積もっている。このデバイスも“全集積化”型であるため、コンパクトで使い勝手のよいものになるだろう。

(3) THz 計測の物質科学研究への応用について

THz 分光・イメージングは幅広い用途が可能であり、特に「非破壊検査」の観点から将来は巨大な市場形成につながる可能性を秘めている。こういった展開とともに、物質・材料研究への応用も興味深い課題である。THz 光の特徴として、光子エネルギーが meV 領域、電磁波振動の時間が ps 領域にあることも重要な要素である。したがって、半導体、超伝導体、有機導体などの物質中電子の低エネルギー励起状態やダイナミクスの空間・時間特性を調べるツールとして、本研究で開発した高感度 THz 検出器や高分解能 THz イメージングが大きな威力を発揮すると期待している。

1つの面白い方向性として、グラフェンにおける THz 発光イメージングを測定することで、ディラックフェルミオンの局所的なエネルギー散逸機構や伝導特性を探求することを計画している。

8. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- ・ Yukio Kawano and Tohru Okamoto, "Macroscopic Channel-Size Effect of Nonequilibrium Electron Distributions in Quantum Hall Conductors", Physical Review Letters 95, 166801-1-4 (2005)
- ・ Yukio Kawano and Tohru Okamoto, "Noise-voltage mapping by a quantum-Hall electrometer", Applied Physics Letters 87, 252108-1-3 (2005)
- ・ Yukio Kawano, Tomoko Fuse, Seiko Toyokawa, Takeo Uchida, Koji Ishibashi, "Terahertz photon-assisted tunneling in carbon nanotube quantum dots", Journal of Applied Physics vol. 103, pp. 034307-1-4 (2008) and subsequently selected for Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology vol. 17, (2008)
- ・ Yukio Kawano and Koji Ishibashi, "An on-chip near-field terahertz probe and detector", Nature Photonics 2, 618-621 (2008)

論文(国内)

- ・ 河野 行雄, "高感度テラヘルツ波検出器 —近接場イメージングへの応用—", 日本光学会誌「光学」・特集「テラヘルツ波デバイスの開発と応用」 38, 81-88 (2009)

(2)特許出願

発明者:河野 行雄、石橋 幸治

発明の名称:近接場テラヘルツ光検出器

出願人:独立行政法人 理化学研究所

出願日:2008年8月7日(未公開)

出願番号:特願 2008-178041

発明者:河野 行雄、石橋 幸治

発明の名称:テラヘルツ光検出装置とその検出方法

出願人:独立行政法人 理化学研究所

出願日:2008年9月1日(未公開)

出願番号:特願 2008-222980

発明者:河野 行雄、石橋 幸治

発明の名称:Near-field terahertz wave detector

出願人:独立行政法人 理化学研究所

出願日:2009年1月9日(未公開)

出願番号:US12/351208

発明者:河野 行雄、石橋 幸治

発明の名称:テラヘルツ電磁波検出装置とその検出方法

出 願 人:独立行政法人 理化学研究所

出 願 日:2009年2月9日(未公開)

出 願 番 号:特願 2009-27537

(3)受賞

- ・平成19年9月 第22回応用物理学会講演奨励賞受賞
- ・平成20年9月 第2回日本物理学会若手奨励賞受賞
- ・平成21年3月 平成20年度光科学技術研究振興財団・研究表彰受賞

(4)著書

- ・ Yukio Kawano, Tomoko Fuse and Koji Ishibashi, "Ultra-highly sensitive terahertz detection using carbon-nanotube quantum dots", Physics and Modeling of Tera- and Nano-Devices (World Scientific Publishing Co Pte Ltd), 2008

(5)学会発表

口頭発表(国際)

- ・ Yukio Kawano, Tomoko Fuse, Takeo Uchida, Koji Ishibashi, "Observation of terahertz-photon sidebands in carbon nanotube quantum dots", 17th International Conference on the Electronic Properties of Two-Dimensional Systems (EP2DS-17), 2007
- ・ Yukio Kawano, "Terahertz sensing and imaging using carbon nanotubes: application to quantum transport", LISE Special Seminar at Harvard University, 2008
- ・ Yukio Kawano, Tomoko Fuse, Seiko Toyokawa, Takeo Uchida, Koji Ishibashi, "Highly sensitive and frequency-tunable THz detector using carbon nanotube quantum dots", 33rd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2008
- ・ Yukio Kawano and Koji Ishibashi, "On-chip near-field THz imaging probe integrated with a detector", 33rd International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2008
- ・ Yukio Kawano and Koji Ishibashi, "Near-field terahertz detection on one chip", International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2009, 2009

(6)招待講演

招待講演(国際)

- ・ Yukio Kawano and Tohru Okamoto, "Spatial imaging of noise voltages by a quantum-Hall scanning electrometer", 7th International Conference on New Phenomena in Mesoscopic Structures/5th International Conference on Surfaces and Interfaces of Mesoscopic Devices, 2005
- ・ Yukio Kawano, "Terahertz sensing and imaging based on carbon nanotubes: frequency-selective detection and near-field imaging", JST-DFG Workshop on

Nanoelectronic、2008

・ Yukio Kawano、"Frequency-tunable detection and near-field imaging of THz waves"、International Symposium on Terahertz between Japan and Sweden、2008

・ Yukio Kawano、"Application of low-dimensional electronic devices to THz technology: Carbon nanotube detector and near-field imaging"、2nd Japan-Korea Joint Workshop on THz Technology、2008

招待講演(国内)

・ 河野 行雄、"超高分解能テラヘルツ波イメージングー固浸レンズ式と近接場式ー"、電子情報通信学会大会・2009 年総合大会シンポジウム「ここまでのミリ波・テラヘルツ波イメージング」、2009

(B) その他の主な成果

なし