

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 23 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05423

研究課題名(和文) 極低温テラヘルツSNOM/STMの開発

研究課題名(英文) Development of low-temperature THz SNOM/STM

研究代表者

梶原 優介 (Kajihara, Yusuke)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：60512332

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、表面電子系が本質的な役割を果たす物質現象をより深く探るため、THz-SNOMの能力を飛躍的に発展させることにあった。そのため、単色のみ検出可能であったTHz検出器CSIPの多色化を進め、3色CSIPを実現した。また観察対象を極低温(4.2 K)まで拡張する極低温SNOM/STMを低温チャンバ内に設計・構築し、遠隔場画像の取得および低温AFM駆動を達成した。加えて、応用展開を見据えて常温試料からのナノサーモメトリー技術を確立した。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study was to dramatically increase the ability of passive-type THz scanning near-field microscope to deeply study the local phenomena of materials. We designed a multi-color CSIP (Charge-Sensitive Infrared Phototransistor) to detect multiple wavelengths and achieved 3 color detection. In parallel, we have designed and developed a low-temperature (4.2 K) SNOM/STM in the low-temperature cryostat and achieved far-field images and accurate tip control. In addition, we developed nano-thermometry technique from room-temperature objects for further industrial applications.

研究分野：加工計測学

キーワード：エバネッセント波 テラヘルツ波 極低温 量子井戸 熱雑音 ショット雑音

1. 研究開始当初の背景

物質をナノスケールで観察すると、分子や格子の熱運動にともなう局所的な分極が生じている。そこから生じる電磁波のモードは殆んどがTHz領域(特に波長8~20 μm)であり、表面に強く局在する[Joulain et al., Sur. Sci. Rep. 2005]。つまり、物質表面に自然発生する局在THz電磁波を直接検出できれば、物質や生命の素過程に迫ることができるはずである。そのためには「パッシブ(外部照射光を使わない)かつ「ナノ分解能」を実現するTHz顕微技術が求められるが、実現例は無かった。しかし最近、世界最高感度のTHz検出器CSIP(Charge Sensitive Infrared Phototransistor)[Komiya, IEEE 2011]を導入してTHz近接場顕微鏡(SNOM)を構築し、常温の物質表面に局在するTHz波を、パッシブかつナノスケールで検出することに世界で初めて成功した。空間分解能は20 nmに達する。本計測法は局所的な熱/電磁場分布を検出できるため、広分野に適用可能である。

構築したパッシブ型THz-SNOMは、常温物質から生じる微弱なTHz波を検出できるが、「低温物性」および「局所摂動に対するレスポンス」が観測できないことを課題として残す。例えば、超伝導やPhoton Assisted Tunnelingなど興味深い物質現象は極低温で生じる。またSTM(走査トンネル顕微鏡)によってトンネル電流を印加することにより、生体タンパクが様々な応答を示すことはよく知られている。これらの現象によって生じるTHz波を捉えることができれば、表面物性探索が飛躍的に向上する。加えて分光機能を付加すれば、情報量は圧倒的に増加する。そこで本研究ではTHz-SNOMのさらなる発展のため、極低温(4.2 K)においてパッシブ、アクティブ(トンネル電流印加)いずれでも観察でき、分光も可能なSNOM/STMを構築する。新顕微鏡では極低温において、パッシブ計測(図1(a))のほか、図1(b)のようにSTM探針と物質表面の間にトンネル電流を発生させ、その摂動の応答に伴うTHz発光も検出・分光できる。申請者は常温で局在THz光子検出に成功しており、提案顕微技術の実現可能性は極めて高い。

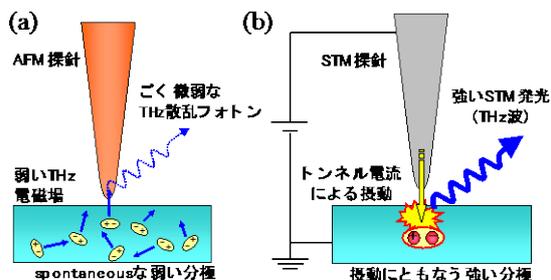


図1 (a) パッシブ近接場計測, (b) STM誘起THz発光

2. 研究の目的

本研究では、常温試料のみ単色で観測可能

なTHz近接場顕微鏡に対し、「低温観察」「分光」「トンネル電流誘起発光」という3つの新機能を付加し、物質・生命現象観測へ向けて顕微鏡の機能を飛躍的に向上させることを目的とした。具体的には、1) 極低温(4.2 K)で動作する高速・高分解能THz-SNOM/STMの構築、2) 広帯域CSIPの導入及び分光光学系の構築、3) 構築SNOM/STMによる低温パッシブ近接場分光(パッシブSNOM分光)の実現、4) 構築SNOM/STMによるTHz誘起発光分光の実現と物質現象観測への応用、である。1),2)によって完成した顕微鏡を利用して、様々な応用展開を模索する。

3. 研究の方法

目的の達成に向けて、研究期間において、以下の主な3つについて研究を行った。

(1) 多色CSIPの開発

本研究で使用する検出器CSIP(Charge Sensitive Infrared Phototransistor)は、量子井戸におけるサブバンド間遷移を利用しているため、原則として検出波長は量子井戸幅で決まる。そのため高感度であるものの狭帯域(バンド幅: ~1.5 μm)であり分光に適さない。分光を実現するには広帯域対応のCSIPが必要不可欠である。しかし申請者らは最近、幾つかの波長帯に対応させた量子井戸を1素子内に複数個作製することによって、CSIPの多色化を実現している[特願2014-037150]。多色CSIPの構造を利用し、アンテナ構造やウエハのバンド構造に改良を加えつつ、ウエハ作製、検出器作製、評価、というステップを何度も繰り返すことによって、広帯域CSIPを揃える。対象波長は物質・生命現象のモードを多く含む8~20 μmである。

(2) 低温SNOM/STM(4.2 K)の開発

高速・高分解能のSNOM/STMを液体Heチャンバ内に構築する。探針は、酸化の影響が小さい探針-サンプル間距離の高速・高精度な位置決めが重要となるが、特にトンネル電流は探針-サンプル間距離が1 nm程度まで接近しないと発生しないため、探針アプローチ時の粗動・微動のバランスがキーとなる。そこでAFMに汎用されるチューニングフォーク(固有振動数~32 kHz)先端の電極に探針を導電性接着剤にて接着し、粗動をAFMのシアフォース制御、微動をSTMのトンネル電流制御によって行うことで高速位置決めを実現する。空間分解能の目標値は1 nm(STM駆動時)である。

(3) 開発SNOMの応用展開

試料温度が常温、低温に関わらず、本SNOMの特性(局所的な電磁場が検出可能)が活かせる応用展開を進める。

4. 研究成果

(1) 多色CSIPの開発

1 検出器で3波長の検出器が可能な3色CSIPのGaAs/AlGaAs結晶を設計(図2)し、結晶成長した。当該結晶に電子ビーム描画装

置によって 3 色 CSIP を作製し、実際の検出波長を測定したところ、分光結果は図 3 のように得られた。GaAs フォノンの第 2 次共鳴波長 (18-19 μm) が最も長い検出予定波長 (17.5 μm) に近いので、De-polarization によって検出波長が低波長側にシフトしているものの、図 4 のように 3 波長が単体で検出可能な CSIP を作製することに成功した。単波長 CSIP では検出波長帯域が 1.5 μm 程度しかなかったものの、本検出器では 10–17 μm に渡る広帯域を 1 つの検出器で検出できるとなり、分光計測に向けてエポックメイキングとなり得る結果であると言える。

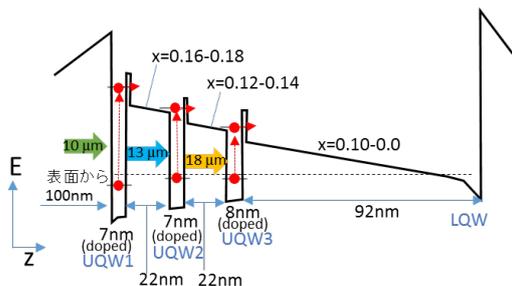


図 2 CSIP (3 色) のバンド構造

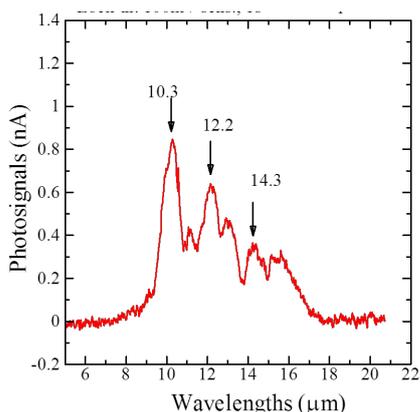


図 3 CSIP (3 色) の分光結果

(2) 低温 SNOM/STM(4.2 K)の開発

まず、パッシブ型 THz 近接場顕微鏡の試料や近接場プローブを、検出器 CSIP や光学系とともに全て低温 (4.2 K) チャンバ内に搭載した低温 SNOM の設計を行った。その後、実際の装置構築及び低温試料からの THz 近接場信号検出に向けて開発を進めた。装置が完全に組み上がったのは、SNOM の冷却実験によってチャンバ内が動作温度 10 K 以下に問題なく冷却すること、また低温 SNOM 内に組み込んだ CSIP が問題なく動作し、シャッターを閉じている場合は外からの光が完全に遮断されること (迷光がゼロであること) を確認した。

最終的な近接場信号取得のためには近接場探針先端と CSIP 検出光学系の焦点、および試料の観察部が誤差 5 μm 以内で完全に一致する必要がある。そのため、図 4 に示すようにチャンバ外部から探針先端近傍が観察

できるようにチューブレンズ光学系を構築し、窓を経てチャンバ外から観察できるように装置を改良した。図 5 は、低温チャンバ内に設置した Au 配線に電圧を印加した状態で Far-field 信号である。Far-field 検出、AFM が問題なく動作することを確認し、近接場信号取得に向けてあと一歩に迫った。

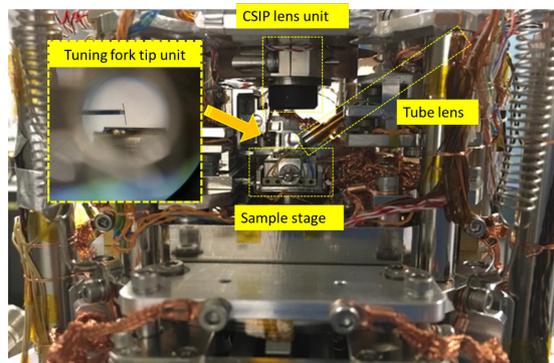


図 4 チャンバ内の SNOM 構造

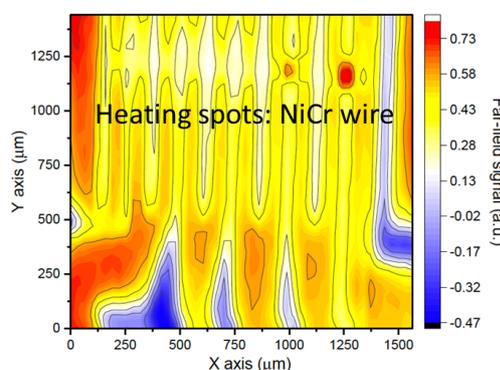


図 5 Far-field 像

(3) 開発 SNOM の応用展開

東北大学・尾辻研究室の協力を得て SiC 上のグラフェン試料を作製した。試料は図 6 左のような構造をしており、長さ 1.4 μm 、幅 0.7 μm の狭窄部構造を持つ。本実験の目的は、他技術では検出することが困難なマイクロな雑音分布をナノ分解能で可視化することにある。バイアスしたグラフェンのマクロな雑音情報は、コンダクタンス等を測定することによって検出されているものの、マイクロな雑音分布を取得した例はこれまでにない。本実験の結果によっては、次世代デバイスであるグラフェンの物性探索はもちろん、シミュレーションでは非常に困難であるデバイス設計の最適化において非常に大きな貢献が期待できる。

図 6 右は、グラフェンへの印加電流を変化させた際の、THz エバネッセント波をマッピングした結果である。本実験においては、探針を上下に振動させて信号を変調させる形ではなく、探針は上下に振動させずに電流を 40 Hz で変調して信号を変調し、ロックイン復調によって信号を得ている。図のように、バイアスを上げていくと、狭窄部分の電流密度が向上し、エバネッセント波の強度が上昇

しているのが見てとれる。特に 1.77 mA を流した結果では、狭窄部とそれ以外の部分で信号強度が約 5 倍程度と大きな差が生じている。有限要素法を用いたシミュレーションにおいて電流密度を計算した場合でも、同様に 5 倍程度の密度差が生じており、ほぼ電流密度差が信号強度差として現れた結果だと考えられる。狭窄部の信号要因はグラフェン表面の雑音であるが、信号の拡がり熱の拡がり（電子-フォノン間の熱拡散距離）の計算値とほぼ同じであるため、本信号は熱励起エバネッセント波に起因すると考えられる。今後の低温 SNOM を利用した実験では、熱励起で無い信号の取得が期待できる

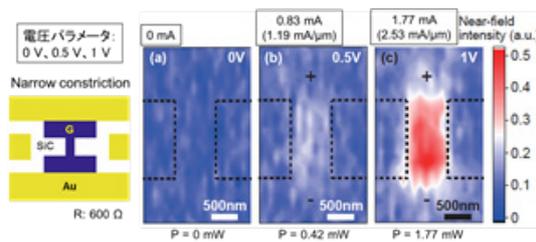


図 6 グラフェン狭窄部素子 (左) および、電圧印加時の THz エバネッセント波 (右)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 8 件)

- ① S. Kim, S. Komiyama, T. Ueda, T. Satoh, and Y. Kajihara, Two-color detection with charge sensitive infrared phototransistors, *Appl. Phys. Lett.*, 107, 1182106 (2015).
- ② K.-T. Lin, S. Komiyama, and Y. Kajihara, Tip size dependence of passive near-field microscopy, *Opt. Lett.*, 41, 484-487 (2016).
- ③ S. Kim, S. Komiyama, S. Matsuda, M. Patrashin, and Y. Kajihara, Improved Performance of Ultrahigh-Sensitive Charge-Sensitive Infrared Phototransistors (CSIP), *International Journal of High Speed Electronics and Systems*, 25, 3&4, 1640021 (2016).
- ④ K.-T. Lin, S. Komiyama, S. Kim, K. Kawamura, and Y. Kajihara, A high signal-to-noise ratio passive near-field microscope equipped with a helium-free cryostat, *Rev. Sci. Instr.* 88, 1, 13706 (2017).
- ⑤ Y. Kajihara, Y. Tamura, K. Matsuzaka, S. Kadoya, and F. Kimura, Measuring moisture content of pulp-injection molded products with terahertz waves, *Int J. Automation Technology*, 11, 5, 766-771 (2017).
- ⑥ 梶原優介, 計測技術 -テラヘルツ計測 2-, 成形加工, 27, 7, 288-292 (2015).
- ⑦ 梶原優介, 物質自体の発光をナノスケールで検出する顕微技術, 化学工業, 67, 8, 15-21 (2016).
- ⑧ 梶原優介, 小宮山進, 揺らぎをナノスケールで観察する顕微鏡, 応用物理, 86, 3, 198-203 (2017).

〔学会発表〕 (計 25 件)

1. Sunmi Kim, Susumu Komiyama, Mikhail Patrashin, Iwao Hosako, and Yusuke Kajihara, A Nanogap Antenna for Charge-Sensitive Infrared Phototransistors, Joint symposium of MTSA2015 and TeraNano-6, OIST, Okinawa, Japan, July 1 (2015). (招待講演)
2. Yusuke Kajihara, Passive terahertz near-field microscopy with 20 nm resolution, International Symposium on Surface Topography & Optical Microscopy (IS2TOM), Beidahuang International Hotel, Harbin, China, July 24 (2015). (基調講演)
3. Yusuke Kajihara, Takafumi Yokoyama, Kuan-Ting Lin, and Sunmi Kim, Probing thermal evanescent waves on dielectric surfaces, IRMMW-THz2015, The Chinese University of Hong Kong, Aug. 25 (2015). (招待講演)
4. 梶原優介, 物質自身の THz 発光をナノスケールで検出する顕微技術, テラヘルツテクノロジーフォーラム 2017 年度講演会, 慶應義塾大学, 5 月 12 日 (2017). (招待講演)
5. Q. Weng, S. Komiyama, L. Yang, Z. An, Y. Kajihara, W. Lu, Real-space nano-imaging of hot electron dynamics, IRMMW-THz 2017, Cancun, Mexico, Aug. 27-Sep.1 (2017). (招待講演)
6. D. Nakagawa, S. Kitta, K. Akiba, K. Ikushima, S. Kim, M. Patrashin, Y. Kajihara, and S. Komiyama, Response of charge sensitive infrared phototransistor in strong magnetic fields, Joint symposium of MTSA2015 and TeraNano-6, P1-19, OIST, Okinawa, Japan, July 1 (2015).
7. T. Yokoyama, K.-T. Lin, S. Kim, and Y. Kajihara, Probing thermal evanescent waves on dielectrics with a passive near-field microscope, ISMTII 2015, 1116, Taipei, Taiwan (2015).
8. Kuan-Ting Lin, Susumu Komiyama, Sunmi Kim, Ken-ichi Kawamura, and Yusuke Kajihara, A passive THz near-field microscope equipped with a helium-free cryostat, ISMTII 2015, 1095, Taipei, Taiwan (2015).
9. Yusuke Kajihara and Yuta Kanehara, Laser-assisted tip positioning method for a passive near-field microscope, LEM21 2015, 1513, Kyoto, Japan, (2015).
10. Yusuke Kajihara, Takafumi Yokoyama, Kuan-Ting Lin, and Sunmi Kim, Terahertz nanoscopy of spontaneous surface waves on dielectrics, euspen 16th International Conference & Exhibition, Nottingham, UK, June 2, (2016).
11. Kuan-Ting Lin, Susumu Komiyama, and Yusuke Kajihara, Ultra-highly sensitive passive near-field microscopy of electromagnetic evanescent waves, Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS), Shangshai, China, Aug. 8-11, (2016).
13. Kuan-Ting Lin, Susumu Komiyama, Sunmi Kim, Ken-ichi Kawamura, and Yusuke Kajihara, Development of a cryogen-free passive near-field microscope, Progress in Electromagnetics

Research Symposium (PIERS), Shangshai, China, Aug. 8-11, (2016).

14. K.-T. Lin, S. Komiyama, S. Kim, K. Kawamura, and Y. Kajihara, Improved signal-to-noise ratio in a passive THz near-field microscope equipped with a helium-free cryostat, 41st IRMMW-THz 2016, Copenhagen, Denmark, Sep.25-30 (2016).

15. S. Kim, S. Komiyama, M. Patrashin, Y. Kajihara, An Efficient Nanogap Antenna for Charge-Sensitive Infrared Phototransistors, 41st IRMMW-THz 2016, Copenhagen, Denmark, Sep.25-30 (2016).

16. Yusuke Kajihara, Takafumi Yokoyama, Kuan-Ting Lin, and Sunmi Kim, Probing phonon-derived thermal evanescent waves with different wavelengths, 41st IRMMW-THz 2016, Copenhagen, Denmark, Sep.25-30 (2016).

17. S. Kim, S. Komiyama, M. Patrashin, Y. Kajihara, Improved Performance of Ultrahigh-sensitive Charge-Sensitive Infrared Phototransistors, 5th Russia-Japan-USA-Europe Symposim on Fundamental & Applied Problems of Terahertz Device & Technologies (RJUSE TeraTech-2016), Sendai, Japan, (2016) 140-141.

18. K.-T. Lin, S. Komiyama, S. Kim, K. Kawamura, and Y. Kajihara, A Highly Sensitive Passive THz Near-field Microscope with a Cryogen-free Cryostat, 5th RJUSE TeraTech-2016, Sendai, Japan, (2016) 132-135.

19. K.-T. Lin, Q. Weng, H. Nema, S. Kim, K. Sugawara, T. Otsuji, S. Komiyama, and Y. Kajihara, Near-field nanoscopy of shot noise in bilayer graphene, 22nd International Conference on Electronic Properties of Two Dimensional Systems (EP2DS-22), Penn state, USA, Jul31-Aug4 (2017) 2DO-9.

20. Qianchun Weng, Susumu Komiyama, Le Yang, Zhenghua An, Yusuke Kajihara, and Wei Lu, Visualize hot electrons in two-dimensional devices at steady-state, 22nd International Conference on Electronic Properties of Two Dimensional Systems (EP2DS-22), Penn state, USA, Jul31-Aug4 (2017).

21. K.-T. Lin, Q. Weng, H. Nema, S. Kim, K. Sugawara, T. Otsuji, S. Komiyama, and Y. Kajihara, Near-field nanoscopy of current-induced excess noise in graphene, 42th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2017), Cancun, Mexico, Aug.27-Sep 1 (2017) WC1.1

22. Akira Kikuchi, Kuan-Ting Lin, Hirofumi Nema, Sunmi Kim, and Yusuke Kajihara, Nano-probing of Spontaneous Evanescent Waves on Thin Layer Films Derived from Local Noises, International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN 2017), Seoul, Korea, Nov. 16 (2017).

23. Kazuyuki Yamanaka, Sunmi Kim, Fuminobu Kimura and Yusuke Kajihara, Improving

Quantum Efficiency of Quantum Well-based Sensitive Terahertz Detector, International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN 2017), Seoul, Korea, Nov. 16 (2017) OPT-O-06..

24. K.-T. Lin, Q. Weng, H. Nema, S. Kim, K. Sugawara, T. Otsuji, S. Komiyama, and Y. Kajihara, Nano-imaging of Excess Noise in Graphene with THz Near-field Microscopy, The 25th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM25), Atagawa, Japan, Dec. 7-9 (2017) S4-37.

25. A. Kikuchi, K.-T. Lin, H. Nema, F. Kimura and Y. Kajihara, Observation and analysis of thermal evanescent waves on ultra-thin Au films, The 25th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM25), Atagawa, Japan, Dec. 7-9 (2017) S9-2.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.snom.iis.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

梶原 優介 (KAJIHARA, Yusuke)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号 : 60512332

(2)研究分担者

()

研究者番号 :

(3)連携研究者

()

研究者番号 :