

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 4 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24244046

研究課題名(和文)熱励起エバネセント波による物質の研究

研究課題名(英文)Material Research through Thermal Evanescent Waves

研究代表者

小宮山 進(Komiyama, Susumu)

東京大学・総合文化研究科・特任研究員

研究者番号：00153677

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 23,100,000円

研究成果の概要(和文)：あらゆる物質の表面には、電子やイオンの熱揺らぎによるエバネセント(電磁)波が存在するが、従来、技術的困難により実験研究はほとんど無かった。本研究では、超高感度検出器(CSIP)を近接場顕微鏡に組み込んで可視化を初めて実現し、物質の研究に応用すると共に更なる装置開発を進めた。

極性結晶では、表面フォノンポラリトンの重要性と共に、金属深針と物質表面との結合の重要性を明らかにし、また、電流存在下の金属細線ではナノサーモメトリを実証した。3次元トポロジカル絶縁体(Bi₂Se₃)と多層グラフェンの予備的測定でエバネセント波の存在を確認し、低温度での実験を可能とすべく、より高感度のCSIPを開発した。

研究成果の概要(英文)：Any material surface supports electromagnetic evanescent waves due to thermal motion of conduction electrons or ion cores. Here, we visualize thermal evanescent waves with unprecedented high spatial resolution, by incorporating a ultra-highly sensitive THz detectors in a near-field THz microscope. While revealing new aspects of matters, we also put forward further improvement of the equipment.

In polar crystals, importance of surface phonon polaritons is confirmed and the role of tip-surface coupling is clarified. In narrow metal wires evanescent waves are locally induced by electrical currents, demonstrating novel nano-thermometry. Preliminary measurements on three-dimensional topological insulator (Bi₂Se₃) and multi-layered grapheme confirm the existence of evanescent waves, indicating physical importance of measurements at low temperatures. Performance of CSIPs has been continuously improved during this study, by which most of the measurements were made possible.

研究分野：物理学

キーワード：熱励起エバネセント波 近接場テラヘルツ波 表面フォノンポラリトン 超高感度赤外光検出器 近接場光学

1. 研究開始当初の背景

有限温度のあらゆる物質は、電荷・電流の揺らぎに起因して電磁波を生成する。波長より遠方(遠隔場)では、それがプランク輻射を与えるが、物質表面のごく近傍(近接場)では、プランク輻射に比べて桁違いに強いエバネセント波がテラヘルツ領域に生じることが理論的に予想されていた(図1)。ところが、実験で熱励起のエバネセント波が直接観測

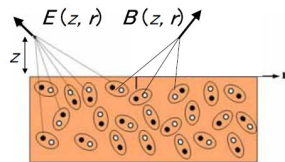


図1: 物質中の電荷・電流揺らぎが表面にエバネセント波を作る。

されたことは従来無かった。

ところが、本研究開始直前に、研究代表者のグループでは、独自に開発し超高感度のテラヘルツ検出器(CSIP: Charge Sensitive Infrared Phototransistor)を、特別に設計した自作のテラヘルツ共焦点顕微鏡に組み込み、さらに、顕微鏡の焦点位置にAFM制御の金属探針を置くことでエバネセント波を散乱し(図2(a), (b))、深針の上下変調による変調成分を共焦点顕微鏡で検出すること



図2: 金属探針によるエバネセント波の散乱 (a)針位置が高く散乱なし (b)散乱波が生成

によって、金属(Au, Al, Ti)のエバネセント波の直接計測に初めて成功した。

このように、理論的に予測されていたが実験的には検出されていなかった熱励起エバネセント波を、初めて観測できる実験手段が開発された。それを物性研究に役立てるとともに、実験手段としてさらに発展させるべき状況が生じていた。これが、研究開始当初の背景である。

2. 研究の目的

熱励起エバネセント波は、揺らぎに起因するため、あらゆる物質に普遍的に存在する。エバネセント波のスペクトルや強度は、揺動散逸定理により、その帯域での物質中の電子や格子のダイナミクスを直接反映するため、物質研究に興味ある新たな対象を提供する。本研究は、エバネセント波が物性探索へのユニークなプローブであることに着目し、2つの面から研究を進める。

(1) 物質研究への応用

熱励起エバネセント波という物質プローブを、物質現象の新たな探求手段として応用する。具体的には、極性結晶、金属細線、さらには3Dのトポロジカル絶縁体やグラフェンでの計測を試みる。

極性結晶では、陰陽イオンの相対運動がエバネセント波をもたらす筈であり、特に、縦・横光学フォノン(L0, T0-phonon)に伴ういわゆる Reststrahlen 帯での表面フォノンポラリトン共鳴(SPhP)に着目する: 共鳴に伴う熱励起エバネセント波の増大が予想される。また、L0, T0-phononに加えて、ピエゾ音響フォノン(Ac-phonon)の熱励起エバネセント波への寄与も調べる。

金属細線については、金属の種類による違いとともに、電流通電に伴う金属細線の局所的な加熱状態をナノメートル分解能で画像化することを試みる。

3次元(3D)トポロジカル絶縁体、およびグラフェンについては、既に、様々な面から新奇な物性の解明が進んでいる。本研究では、物性プロブとしてエバネセント波の検出がどのように有効なのか、可能性を探求する。

(2) 計測方法の解析と計測装置の開発

熱励起エバネセント波をプローブとして物質を研究する試みは、それ自体が新しい挑戦である。そのために、計測手法自体に関する研究と開発を同時並行的に進める必要がある。

第1に、計測によってそもそも何が分かるのか、について理論的理解を深めるために、深針プロブのサイズを系統的に変化させて、深針と試料表面との電磁氣的結合の解析を進める。第2に、測定のS/N比のさらなる向上と、計測波長範囲の拡大が重要である。そのために、超高感度検出器(CSIP)のさらなる開発を進めて高感度化と広帯域化を目指す。第3に、基礎物性の探求には、測定温度の範囲を低温に拡張する事が極めて重要であり、その可能性を探る。

3. 研究の方法

熱励起エバネセント波を検出する上での問題は、(1)エバネセント波起因の信号の絶対強度が極微弱であること、とともに(2)その極微弱信号光が、背景からの何桁も強いプランク輻射の中に埋もれている事である。それら2つの困難のために、従来、熱励起エバネセント波の顕微計測が不可能だった。本研究では、(1)の困難解決のために、超高感度検出器(CSIP)を開発し、(2)に対処する為に、特別なテラヘルツ近接場顕微鏡を自作した。

(1) 超高感度検出器(CSIP)

CSIPは、商業的に入手可能な従来検出器に比べて千倍以上の超高感度を有し、その高感度性が、熱励起エバネセント波の計測に必須である。図3(c)に示すように、GaAs/AlGaAsの

2量子井戸構造結晶から作られる。表面側の量子井戸(QW: Quantum Well)の受光領域

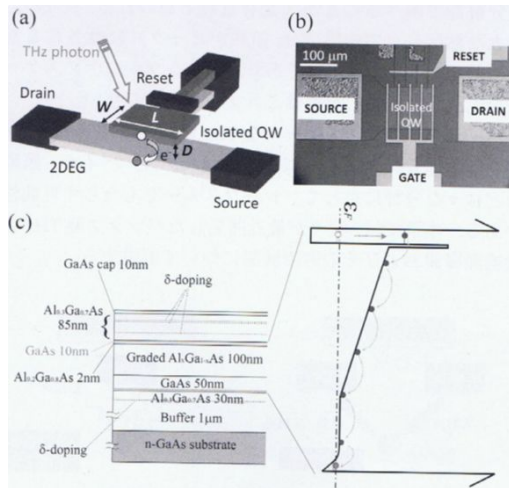


図3 CSIP (a)検出の概念図 (b)光学写真 (c) GaAs/AlGaAsヘテロ構造(左)とバンド構造(右)

を電氣的に孤立させる。孤立した表面量子井戸(孤立QW)にテラヘルツ光が入射すると、サブバンド間遷移によって電子が励起され、図3(c)のように、孤立QWから脱出するため、孤立QWは電子を失って陽に帯電する。陽に帯電した孤立QWのために、下部のQWの伝導度が増大し、光信号として検知される。テラヘルツ光が入射し続けると孤立QWの帯電が飽和するが、リセットゲート(図3(a),(b))に正のパルスを周期的に加えて孤立QWを中和させることで、検出が継続する。

(2)テラヘルツ近接場顕微鏡

CSIP搭載のテラヘルツ近接場顕微鏡を図4に示す。信号光に比して背景輻射が何桁も強い問題に対応する為に、2つの対処を行った。

背景輻射の最小化

テラヘルツの幾何光学顕微鏡として最適設計を行い、図4では明示されていないが、大きなNA(0.6)のGe対物レンズ系とピンホール(125 μ m)を組み合わせることで、回折限界の分解能(約15 μ m)を達成した。この事で、背景輻射の混入を理論限界まで抑え、信号光強度/背景輻射強度の比を約0.001まで向上させた。(市販の赤外顕微鏡に比べて2桁程度の改善。)

背景輻射からの信号の選別

エバネセント波をナノスケールの位置分解能で選別して検出器に導くために、AFMで制御した金属(W)深針を、共焦点顕微鏡の焦点位置にある試料表面に設置する。その際、AFM制御のためのシェアフォース検出の振動と独立に、図2のように深針の高さをナノメートルレベル(10nmから100nm)で、上下に振動する。背景輻射の強度は、深針のナノメートルレベルの、この高さ変化による影響を全く受けないが、エバネセント波は100%の変

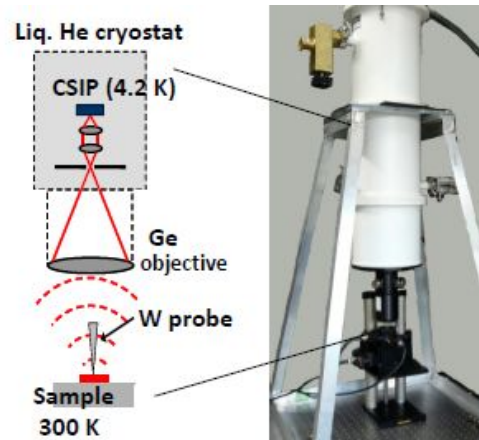


図4: 研究に用いた常温試料用のテラヘルツ近接場顕微鏡: 概念図(左)と実物写真(右)。エバネセント波を金属探針で散乱し、Ge対物レンズで集光して4.2Kに置かれた超高感度検出器(CSIP)に導く。

調を受ける。この2重変調法により、千倍程強い背景輻射から、エバネセント波信号を確実に選別する事を可能にした。

4. 研究成果

(1)標準的金属試料

GaAs基板上的金の微細パターンによる装置の性能を確かめた結果を図5に示す。

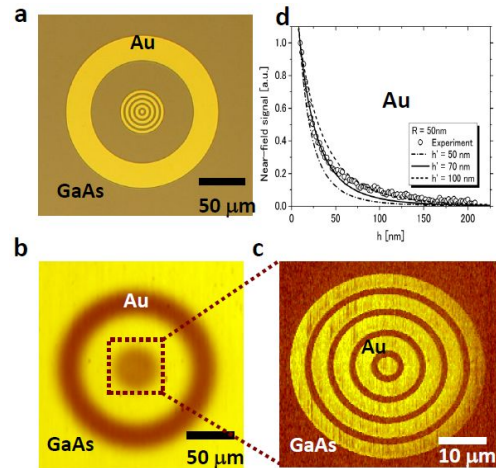


図5 GaAs基板上的金薄膜パターン

(a)光学顕微鏡写真、(b)テラヘルツ(15 μ m)遠隔場画像 (c)同、エバネセント波画像(近接場) (d)エバネセント波強度の表面上の減衰

図5(c)が常温における金属(Au)の熱励起エバネセント波のイメージング画像であり、空間分解能60nm(波長の0.4%)を達成している。図5(d)はエバネセント波強度の、深針-試料間距離依存性を示しており、エバネセント波が試料表面から離れるに従って極めて急激に減少し、100nm程度の距離で1/10程度まで減衰する事を示す。ただし、表面直近

(10nm 程度)でのエバネセント波は極めて強く、エネルギー密度が黒体輻射の 100 倍以上に達する。

(2)極性結晶

(以下では、表面フォノンポラリトンを SPpP、縦、横の光学フォノンを L0、T0-phonon と略記する。)異なる波長域に Reststrahlen 帯を持つ 5 種類の極性単結晶試料、 SiO_2 (8.1:8.0-8.7)・ SiC (10.6:10.3-12.5) AlN (11.6:11.0-14.9)・ GaN (14.1:13.5-17.8)・ GaAs (34.0:33.6-36.6)において、それぞれ特徴的なエバネセント波を観測した。-- ()内の 3 つの数値は、それぞれ SPpP 共鳴、L0、T0-phonon の波長の μm 単位での表示。特に顕著な結果を図 6 に示す。検出波長(14.5 μm)が Reststrahlen 帯に含まれる AlN と GaN の信号が強く、かつ、図 6 に AlN の例を示すように、表面から遠ざかるに従って信号がむしろ明確に増大し、40nm 程度で

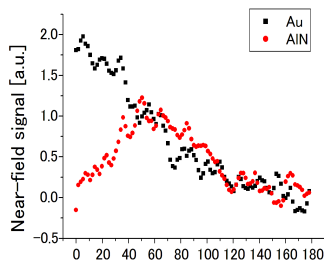


図 6 AlN (赤点)におけるエバネセント波信号 (14.5 μm) の表面から距離依存性

最大値を経た後で減衰する。この結果は、Reststrahlen 帯のエバネセント波が、鋭い SPP 共鳴線から成っている事に関連する。表面-深針の電磁波結合による有効分極率による幾何学的共鳴現象と解釈でき、エバネセント波の検出機構の解析的な理解を深めた。 AlN と GaN 以外の極性結晶では、エバネセント波信号の強度が $\text{SiO}_2 < \text{SiC} < \text{GaAs}$ の順序となっており、さらに、無極性の Si 結晶では有意のエバネセント波が検出されなかった。このことから、ピエゾ相互作用の重要性が示唆された。

(3)深針サイズ依存性

測定系としての特性を明らかにするために、先端の曲率半径が 20nm から 200nm にわたる数種類のタングステン深針を用意して、エバネセント波の計測に対する深針の鋭さの影響を調べた。空間分解能が、おおまかに深針先端の曲率半径に一致して比例して変化する事、一方、表面 深針間距離依存性と検出感度は曲率半径に敏感には依存しない事を見出した。これらの観測事実から、試料表面と金属深針との電磁気的な結合についての単純なモデルを構築し、本計測手法の土台固

めの一步を進めた。

(4)金属細線によるナノサーモメトリ
本計測法の応用面を開拓する意図で、図 7 のように、幅 2 μm の金属細線に電流を流し、局所的な温度分布を人為的に生成した。電流が細線の曲がり角で内側に集中する様子を、エバネセント波によって明確に画像化した。空間分解能はナノメートルオーダー(約 40nm)である。

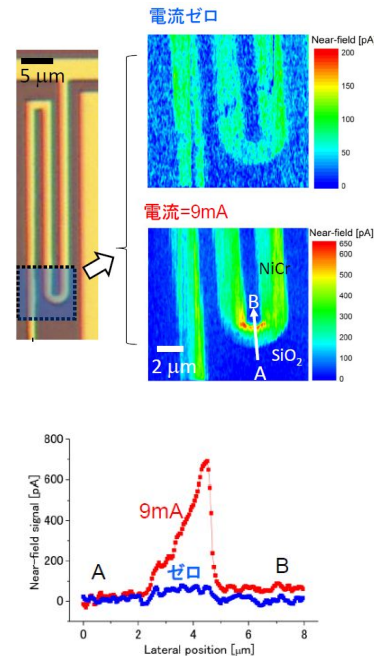


図 7 金属細線への電流通電 (上)イメージング画像。(下)コーナー断面でのエバネセント波の強度プロファイル

(4) 3D トポロジカル絶縁体とグラフェン
新規物性を示す 3D トポロジカル絶縁体とグラフェンについて常温で予備的な実験を行いエバネセント波の存在を確認した。図 8 は金の下地基板の上に幅 50 μm の Bi_2Se_3 を作成し試料での 14.5 μm でエバネセント波のプロファイルであり、金に比べて 1/4 程度の強度が観測される。図 9 右は、左の光学顕微鏡写真が示すように、数層のグラフェン試料を金属電極間に置き、数 mA の電流を流しつつエバネセント波を計測したイメージング画像で

図 8 Bi_2Se_3

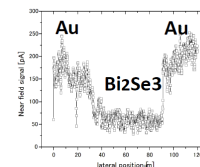
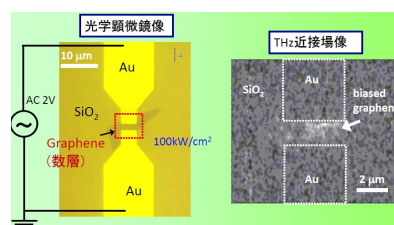


図 9 グラフェン (数層)



ある。電流ゼロでは、おそらくグラフェンの層数が少ないために信号が得られないが、電流を流すことで画像が得られた。

3Dトポロジカル絶縁体、グラフェン共に、Dirac 電子による明確な信号を得るためには、低温での計測が必要であることが判明したため、CSIP 検出器のさらなる開発に進んだ。

(5)CSIP の開発

エバネセント波計測を、物質研究の newly 有効な道具とする為には、さらなる感度向上と波長分光を可能にする事が重要である。そこで、これら 2 つの側面で CSIP 検出器の改善を行った。

量子効率の改善による感度向上

CSIP は他のあらゆる検出器に検出器に比べて優れた感度を有するが、光吸収によって 2次元サブバンド間励起を起こさなければならない点と、吸収が量子井戸 1層のみで起こることから、量子効率が充分高く無かった。従来の金属メッシュによるフォトカプラー(図 (b))では量子効率が7%程度であった。そこで、図 10 のように、プラズマモニック・ナノギャップアンテナをフォトカプラーに採用する事により、一挙に3倍程度の量子効率向上(同様に感度も向上)を実現した。

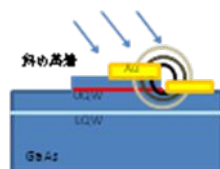
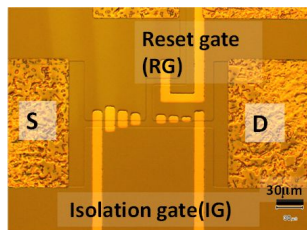


図 10 プラズマモニック・ナノギャップ・アンテナを利用した CSIP : (上) 顕微鏡写真、(下)断面の概念図

分光計測に向けた多色検出の実現

従来の CSIP では、光吸収を起こす孤立 QW(図は表面側の一つの量子井戸(図 3(a)、(c))だけだったために、検出波長は比較的鋭い1本の共鳴線に限られていた。本研究では、光吸収を起こす孤立 QW を、異なる幅を持った 2つの量子井戸にすることで、図 11 に示すように、2つの波長に検出感度のピークを持ち、かつ比較的広帯域の SSIP を開発することで、波長分光計測の可能性を示した。さらに、ゲート電圧の変化によって、検出器自体に分光特性を持たせる可能性を示した。

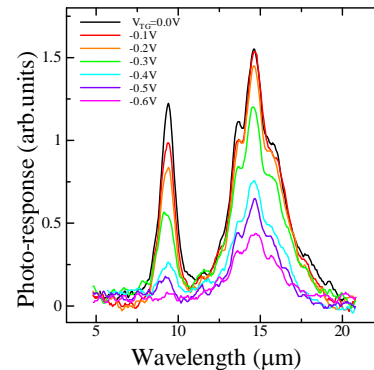


図 11 2色 CSIP

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 8 件)

F. M. Jinjin Xie, S. Xiao, S. Komiyama, W. L. Lei Zhou, and Zhenghua An, Plasmonic light harvesting for multicolor, OPTICS EXPRESS、査読有、21, 2013、295-304

<http://dx.doi.org/10.1364/OE.21.000295>

Y. Kajihara, T. Nakajima, Z. Wang, and S. Komiyama, Terahertz single-photon detectors based on quantum wells, JOURNAL OF APPLIED PHYSICS、査読有、113、2013、136506 (5PP)

doi: 10.1063/1.4795517

Z. Wang, K. Ishibashi, S. Komiyama, M. Patrashin, and I. Hosako, Charge sensitive infrared photo transistors with an integrated plasmonic photocoupler, J. Phys. D: Appl. Phys., 査読有、46、2013、165107(6PP)

doi:10.1088/0022-3727/46/16/165107

[学会発表](計 23 件)

金 鮮美、小宮山 進、佐藤 崇、Mikhail Patrashin、梶原 優介、プラズモニックナノギャップアンテナを利用した電荷敏感型赤外光子検出器(CSIP)、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 12 日 東海大学湘南キャンパス(神奈川県平塚市)

Y. Kajihara and S. Komiyama, Optical nano-thermometry with a sensitive near-field microscope, ICSPM 22, 2014年12月13日、熱川ハイツ(静岡県伊豆熱川)

Y. Kajihara, S. Komiyama, K.-T. Lin, and S. Kim, Terahertz near-field microscopy without external illumination, ICSPM 22, 2014年12月11日、熱川ハイツ(静岡県伊豆熱川)

Susumu Komiyama, Passive Terahertz Near-Field Microscopy of Matters, 5th International Symposium on Terahertz Nanoscience, 2014年12月2日、Martinique (France)

S. Kim, S. Komiyama, T. Satoh, M. Patrashin, and Y. Kajihara, Recent progress in charge sensitive infrared phototransistors (CSIPs), 5th International Symposium on Terahertz Nanoscience, 2014年12月1-5日、Martinique (France)

Y. Kajihara, S. Komiyama, K.-T. Lin, and S. Kim, Near-field microscopy of spontaneous infrared surface waves, IUMRS-ICYRAM 2014, 2014年10月27日、Haikou (China)

金 鮮美、小宮山 進、佐藤 崇、Mikhail Patrashin、梶原 優介、電荷敏感型赤外光子検出器(CSIP)における量子効率の向上、第75回秋季応用物理学会学術講演会、2014年9月17日、北海道大学(北海道札幌市)

林 冠廷、梶原 優介、小宮山 進、パッシブ型 THz 近接場顕微鏡における探針サイズ依存性、第75回秋季応用物理学会学術講演会、2014年9月17日、北海道大学(北海道札幌市)

Y. Kajihara, S. Komiyama, K.-T. Lin, S. Kim, Near-field microscopy of spontaneous evanescent waves, nfo-13, 2014年9月3日、Saltlake City(USA)

S. Kim, S. Komiyama, T. Ueda, T. Satoh, and Y. Kajihara, Two-color detection with a charge sensitive infrared phototransistor (CSIP) in the THz range, ICPS 2014(32nd International conference on the physics of semiconductors), 2014年8月12日、Austin(USA)

金 鮮美、小宮山 進、上田 剛慈、佐藤 崇、梶原 優介、電荷敏感型赤外光子検出器による2色検出、第61回応用物理学会春季学術講演会、2014年3月18日、青山学院大学(神奈川県相模原市)

S. Komiyama, Single-photon detectors in the long-wavelength infrared through submillimeter-wave regions, SPIE Conf., Advanced Photon Counting Techniques VII, 2013年5月2日、Baltimore(USA)

Y. Kajihara, S. Komiyama, Probing local current/temperature distribution with a thermal near-field microscope, FTT 2012, 2012年11月29日、Nara (Japan)

Y. Kajihara, T. Mizutani, and S. Komiyama, Passive THz near-field imaging and its applications for engineering, ICPE 2012, 2012年11月8日、Awajishima (Japan)

Y. Kajihara, T. Mizutani, and S. Komiyama, Nano-thermometry with a sensitive infrared near-field microscope, nfo-12, 2012年9月6日、San Sebastian (Spain)

Y. Kajihara, T. Nakajima, and S. Komiyama, A new scheme of terahertz single-photon detection based on quantum wells, ICPS 2012, 2012年8月2日、Zurich(Switzerland)

〔産業財産権〕

出願状況(計 2 件)

名称: パッシブ型近接場顕微鏡における探針位置合わせ方法及び装置

発明者: 梶原優介、小宮山進、金原優太

権利者: 生産技術研究奨励会

(株)東京インスツルメンツ

種類: 特許

番号: 特願 2014-030852

出願年月日: 2014年2月20日

国内外の別: 国内

名称: 赤外光検出器(多色)

発明者: 梶原優介、小宮山進、金鮮美、上田剛慈

権利者: (独)科学技術振興機構

種類: 特許

番号: 特願 2014-037150

出願年月日: 2014年2月28日

国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕 なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小宮山 進 (KOMIYAMA, Susumu)

東京大学・大学院総合文化研究科・特任研究員

研究者番号: 00153677

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者

生嶋 健司 (IKUSHIMA, Kenji)

東京農工大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号: 20334302