

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601
研究種目：若手研究(A)
研究期間：2012～2014
課題番号：24686006
研究課題名(和文)トンネル電流誘起によるテラヘルツ波の発光・検出・分光

研究課題名(英文) Probing STM-induced THz emission

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) 20,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、STM誘起によるTHz発光計測法の実現を目指した。目的を達成するため、THz近接場顕微鏡に対して、STM機能を付加して常温STMを作製しSTM発光検出にトライした。トンネル電流に起因すると考えられる近接場信号が確認できたものの、その確実な要因まではS/Nが悪いため確認できなかった。S/N向上のため、試料およびSTMを全て極低温環境下に将来的に持っていく必要がある。分光へ向けては、3重量子井戸を持つ2帯域タイプのCSIPを実現し、1素子で高感度に2波長検出可能な検出器の実現に成功した。本発明は本研究分野における分光測定の実現可能性を大きく押し進める結果となった。

研究成果の概要(英文)：In this study we intend to realize a microscopy technique of STM-induced THz emission. We have developed a room-temperature STM in our passive THz near-field microscope and tried to detect STM emission. We observed some near-field signals probably derived by tunnel current emission. However we could not confirm that the signal origin should be the STM emission because of large background noises. To solve the problem, we should develop a similar STM inside a low-temperature chamber. On the other hand, we have succeeded in fabricating 2-color CSIP detectors in THz region in GaAs/AlGaAs "three" quantum well crystals. This 2-colour detector opens the door to further promote near-field spectroscopy in THz region.

研究分野：加工計測学

キーワード：トンネル電流誘起発光 テラヘルツ波 近接場顕微鏡 エバネッセント波

1. 研究開始当初の背景

常温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ほとんどが THz 領域であり、物質表面に強く局在することは理論的に予測されている[Joulain et al., Sur. Sci. Rep. 2005]。つまり物質表面に spontaneous に生じる局在 THz 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、高感度な THz 検出技術が未発達であったため、これまで実現例はなかった。

しかし我々のグループでは最近、世界最高感度の THz 検出器 CSIP(Charge Sensitive Infrared Phototransistor) [Komiyama, IEEE 2011]を導入して THz 近接場顕微鏡を構築し、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[Kajihara et al., Rev.Sci.Instr. 2010]。空間分解能は現在 60 nm である。本計測法は局所的な熱エネルギー分布も検出できるため、広い分野に応用できるであろう。

パッシブ THz 近接場計測は図 1(a)のように、物質内の微視的な熱揺らぎにともなう生じる弱い THz 電磁場を検出するが、エネルギー源を熱に頼る点で物質現象探求の観点からは制約がある。対象として更に興味深いのは「外部からの局所的な摂動に対する物質のレスポンス」である。加える摂動として好適な候補は、nm の領域に局所電流を付加できるトンネル電流であろう。例えば生体タンパクが摂動により様々な応答を示すことはよく知られている。そこで本研究ではパッシブ THz 近接場計測法のさらなる発展のため、STM 誘起による THz 波の発光・検出・分光の実現を目指す。

2. 研究の目的

本研究ではパッシブ THz 近接場計測法のさらなる発展のため、「STM 誘起による THz 波の発光・検出・分光」の実現を目指す。本計測法では、図 2(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(分極など)に伴う THz 発光を検出・分光する。

STM 発光計測は、ナノ物性を分析する強力なツールとして可視/近赤外で実現しており、非弾性表面プラズモンなどを検出している[R. Berndt, et al., Science 1993]。技術的な理由から THz 領域では実現していないが、STM 発光が最もポテンシャルを発揮するのは、物質・生命現象の主たるスペクトルを含む THz 領域であるはずである。申請者は局在 THz フォトン検出に既に成功しており、STM 発光計測の実現可能性は高い。

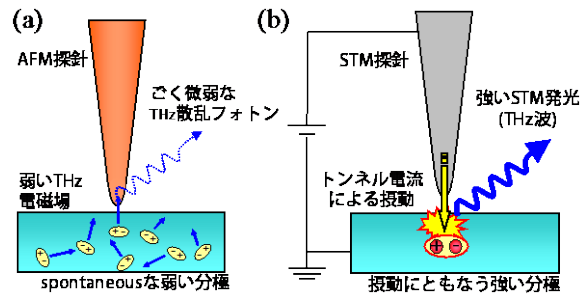


図 1 (a) パッシブ THz 近接場計測

(b) STM 誘起 THz 発光

3. 研究の方法

本研究の目的は、STM 誘起による THz 波の「発光・検出・分光」を実現し、STM 誘起 THz 発光計測法を確立させることである。目的を達成するため、申請者が既に構築した THz 近接場顕微鏡に対して、STM と分光光学系、広帯域対応 CSIP(THz 検出器)を導入し、THz 領域の STM 発光分光を実現する。検出波長帯は、物質・生命現象のスペクトルを豊富に含む 8~20 μm である。

まず常温 STM を開発し、THz 波の「発光」「検出」にトライする。具体的には常温・常圧で動作する高速・高分解能の STM を構築して THz 近接場顕微鏡に導入し、STM 発光・検出を行う。加えて、(i)広帯域対応 CSIP を開発、または(ii)異なる波長の CSIP を複数作製し、専用の分光光学系を構築して STM 発光「分光」を実現する。

4. 研究成果

まず STM 探針は、酸化の影響が小さい PtIr の電解研磨により作製する技術を開発した。研磨液として $\text{CaCl}_2(\text{HCl})\text{H}_2\text{O}$ を利用することにより、図 1 に示すような先端径 100 nm 以下の PtIr 探針を歩留まりよく作製することに成功した。STM の構築にあたり、探針-サンプル間距離の高速・高精度な位置決めが最も重要である。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 STM を実現した。本 STM は、試料と探針の距離が 5 nm 以下になるとトンネル電流が発生し、図 3 のように STM 駆動によって AFM によるトポグラフィ結果と遜色ない結果が得られている。

次に STM 発光検出にトライしたが、トンネル電流に起因すると考えられる近接場信号が確認できたものの、その確実な要因までは S/N が悪いため確認できなかった。S/N 向

上のため、試料および STM を全て極低温環境下に将来的に持って行く必要がある。

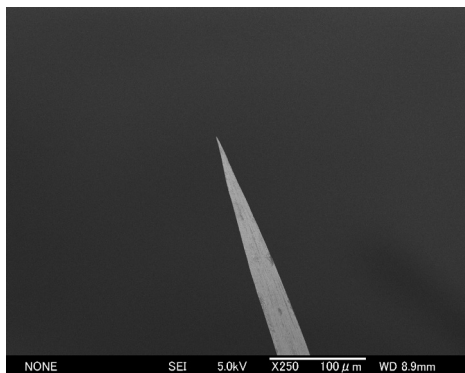


図2 PtIr 探針の SEM 像

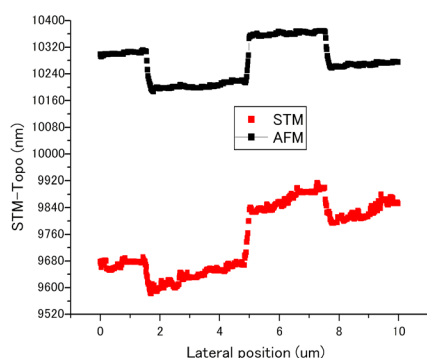


図3 段差における AFM/STM 結果

分光を目指した検出器については予定以上の結果が得られた。検出器 CSIP (Charge Sensitive Infrared Phototransistor) は AlGaAs/GaAs の量子井戸構造を2つ持ち、高移動度電界効果トランジスタ (HEMT) に似た仕組みによって1光子で複数個の電子を生ずる増幅を実現する。現在唯一、単一光子レベルの感度を実現しており、圧倒的な感度を有する THz 検出器である(波長 $15 \mu\text{m}$ において $NEP \cong 7 \times 10^{-20} \text{ W/Hz}^{1/2}$)。しかし量子井戸のサブバンド励起を検出機構として使用するため、これまで CSIP の測定波長が単波長($14.5 \mu\text{m}$ のみ)に限られる点が分光計測などの応用展開を制限しており大きな問題となっていた。そこで本開発では近接場分光計測を見据え、検出波長領域を $12 \mu\text{m} \sim 20 \mu\text{m}$ に広げることが計画している。検出波長領域拡大へ向けて、1)波長帯の異なる検出器のラインナップを揃える(波長 $12, 15, 18 \mu\text{m}$ etc.), 2)多重量子井戸構造による多色 CSIP の作製, という要素技術を進展させ、検出波長領域を広げて分光計測の実現することを目指した。

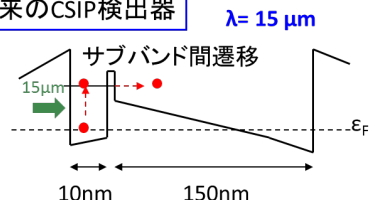
まず、シンガポールの MBE Technology, 台湾の Xpert, 日本の情報通信研究機構(NICT)へ波長 $12, 15, 17 \mu\text{m}$ の CSIP 用 AlGaAs/GaAs 結晶成長を依頼し、結晶を入手した。MBE Technology および NICT の結晶は電子易動度 ($\sim 10^5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$), 酸素濃度(量子井戸間で $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 以下)ともに非常に良好で、 $12, 15,$

$17 \mu\text{m}$ において THz 信号を確認している。

以上に加えて、3 重量子井戸を持つ 2 帯域タイプの CSIP を実現している。

本研究では図1のように、異なる波長を担当する量子井戸を入念に設計して結晶成長したウエハから CSIP を作製したところ、図5の分光結果のように1素子で高感度に2波長検出可能な検出器の実現に成功している。本多色 CSIP については、特許出願を行った。

従来のCSIP検出器



2color CSIP

$\lambda = 8, 16 \mu\text{m}$
1検出器で2波長検出できる可能性

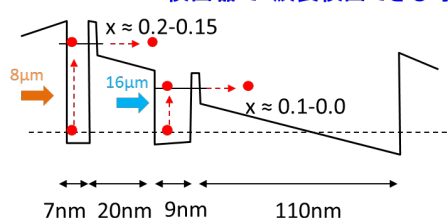


図4 CSIP(2色)のバンド構造

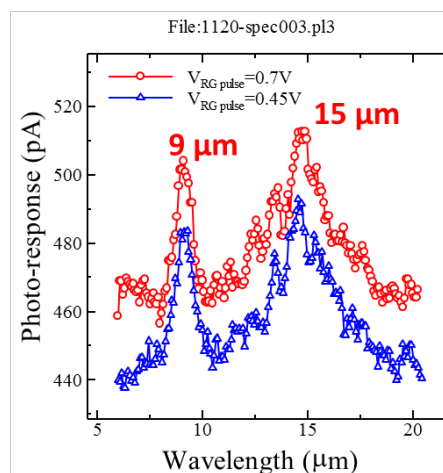


図5 CSIP(2色)の分光結果

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① S. Amarie, P. Zaslansky, Y. Kajihara, E. Griesshaber, W. W. Schmahl, and F. Keilmann: Nano-FTIR chemical mapping of minerals in biological materials, Beilstein Journal of Nanotechnology, **3** (2012) 312-323.
- ② S. Takahashi, Y. Kajihara, and K. Takamasu: Submicrometer thickness layer fabrication for layer-by-layer microstereolithography using evanescent light, CIRP Annals, **61** (2012) 219-222.
- ③ Y. Kajihara, T. Mizutani, and S. Komiyama:

Passive THz near-field imaging and its applications for engineering, *Key Engineering Materials*, **523-524** (2012) 821-825.

④ Y. Kajihara, T. Nakajima, Z. Wang, and S. Komiyama: Terahertz single-photon detectors based on quantum wells, *J. Appl. Phys.*, **113** (2013) 136506.

⑤ 梶原優介, 林冠廷, 金鮮美, 小宮山進: パッシブかつナノスケールな THz 顕微技術, *生産研究*, **65, 6**, (2013) 811-815.

⑥ 梶原優介: 計測技術-テラヘルツ計測-, 成形加工, プラスチック成形加工学会, **26, 7**, (2014) 342-345.

[学会発表] (計 37 件)

1. Yusuke Kajihara, Takashi Nakajima, and Susumu Komiyama : A new scheme of terahertz single-photon detection based on quantum wells, 31st International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS) 2012, ETH, Zurich (2012). (招待講演)

2. Yusuke Kajihara : Probing thermal evanescent field in nanoscale, Condensed soft matter seminar, National Tsing Hua University, (2013). (招待講演)

3. Yusuke Kajihara, Susumu Komiyama, Kuan-Ting Lin, and Sunmi Kim : Near-field microscopy of spontaneous infrared surface waves, IUMRS-ICYRAM 2014, Hainan International Convention & Exhibition Center, Haikou, China, (2014). (招待講演)

4. Yusuke Kajihara : Near-field microscopy of thermally excited waves, Advances in Live Single-Cell Thermal Imaging and Manipulation (ALSCTIM) 2014, Okinawa Institute of Science and Technology, Okinawa, (2014). (招待講演)

5. Yusuke Kajihara : Thermal near-field microscopy without external illumination, The 1st. Korea-Japan Joint workshop of Micro/Nano-Mechatronics & Production technology, Univ. Tokyo, Japan, (2015). (招待講演)

6. Yusuke Kajihara : Ultrasensitive THz nanoscopy, International Symposium on Technology for Intelligent Measurement with Nanoscale, 九州工業大学, (2012). (招待講演)

7. Yusuke Kajihara : Near-field microscopy of spontaneous THz radiation, International Symposium on Ultraprecision Engineering and Nanotechnology, 東京工業大学, (2013).

8. 梶原優介: テラヘルツ計測と加工技術応用への展望, 第 42 回新加工技術専門委員会講演会, 東京工業大学, (2013). (招待講演)

9. 梶原優介: 新概念のテラヘルツ顕微鏡 — サンプル自身の発光をナノスケールで観る —, 光計測シンポジウム 2013, 東京ビッグサイト, (2013). (招待講演)

10. 梶原優介: 試料自身の放射光をナノスケールで検出する新概念の THz 顕微鏡, IMSI 電子実装工学研究所委員会, フォーレスト本

郷, (2013). (招待講演)

11. 梶原優介: パッシブ型テラヘルツ顕微鏡の開発, 2014 年精密工学会春季大会キーノートスピーチ, 東京大学, (2014). (招待講演)

12. 梶原優介: パッシブ+テラヘルツ+近接場 = ?, 精密の日 2014, 東京大学(2014) (招待講演)

13. 梶原優介: パッシブ型 THz 近接場計測法とその応用可能性, 第 6 回 MSTC 研究会, 東京大学, (2015). (招待講演)

14. Y. Kajihara, T. Mizutani, and S. Komiyama: Nano-thermometry with a sensitive infrared near-field microscope, The International conference of Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (nfo-12), 448, San Sebastian, Spain, (2012)

15. Y. Kajihara, T. Mizutani, and S. Komiyama: Passive THz near-field imaging and its applications for engineering, The 14th International Conference on Precision Engineering (ICPE 2012), D04, Awajishima, Japan, (2012).

16. S. Amarie, Y. Kajihara, A. Cernescu, F. Keilmann: Nano-FTIR of minerals in the phonon region, International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2012), WeA1.1., Nara, Japan, (2012).

17. Y. Kajihara, S. Komiyama: Probing local current/temperature distribution with a thermal near-field microscope, International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2012), Nara, Japan, (2012).

18. S. Amarie, A. Cernescu, A. Govyadinov, R. Hillenbrand, F. Huth, Y. Kajihara, F. Keilmann, W. Nuansing: Nano-FTIR: the Chemical Nanoscope, 4th International Topical meeting on Nanophotonics and Metamaterials, Sun4o.1, Tirol, Austria, (2013).

19. 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, 32nd International conference on the physics of semiconductors (ISPS), Austin, USA, 28 (2014)

20. Y. Kajihara, S. Komiyama, K.-T. Lin. S. Kim: Near-field microscopy of spontaneous evanescent waves, The International conference of Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (nfo-13), Saltlake City, USA, 365 (2014)

21. Kuan-Ting Lin and Yusuke Kajihara: Tip size dependence of passive near-field microscopy, The International conference of Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (nfo-13), Saltlake City, USA, 383 (2014).

22. Sunmi Kim, Susumu Komiyama, Takashi Satoh, Mikhail Patrashin, and Yusuke Kajihara: Recent progress in charge sensitive infrared phototransistors (CSIPs), 5th International Symposium on Terahertz Nanoscience,

Martinique, France, 89 (2014).

23. Y. Kajihara and S. Komiyama: Optical nano-thermometry with a sensitive near-field microscope, The 22nd International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM22), Hakone, Japan, S10-6 (2014).

24. Y. Kajihara, S. Komiyama, K.-T. Lin, and S. Kim: Terahertz near-field microscopy without external illumination, The 22nd International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM22), Hakone, Japan, S10-6 (2014).

25. 梶原優介, 小宮山進: 常温熱励起された THz エバネッセント波のナノスケール計測, 第 73 回応用物理学学会学術講演会講演予稿集, (2012) 14p-F8-1.

26. 梶原優介, 小宮山進: マイクロ配線上局所電流分布のナノスケール可視化技術, 第 9 回生産加工・工作機械部門講演会, (2012) D20.

27. 金原優太, 林冠廷, 梶原優介: パッシブ型 THz-SNOM における新規探針位置合わせ法の開発, 2013 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, (2013) 361-362.

28. 林冠廷, 梶原優介: パッシブ型 THz 近接場顕微鏡における分解能 20 nm の実現, 2014 年春季第 61 回応用物理学学会学術講演会講演予稿集, (2014) 18p-F12-9.

29. 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, 2014 年春季第 61 回応用物理学学会学術講演会講演予稿集, (2014) 18p-F9-6.

30. 金原優太, 梶原優介, 林冠廷: THz 近接場顕微鏡におけるレーザを利用した探針位置合わせ装置の開発, 2014 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2014) 51-52.

31. 梶原優介: 表面ナノ構造を利用した樹脂-金属接合技術の基礎検証, プラスチック成形加工学会第 25 回年次大会, (2014) 389-390.

32. 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 回秋季応用物理学学会学術講演会, 北海道大学, 17p-C1-9, (2014).

33. 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 回秋季応用物理学学会学術講演会, 北海道大学, 17p-c6-10, (2014).

34. 金原優太, 梶原優介: パッシブ近接場顕微鏡におけるレーザ利用型探針位置決め装置の開発, Optics & Photonics Japan 2014, 筑波学, 5aB5 (2014)

35. 金鮮美, 小宮山進, 佐藤崇, Mikhail Patrashin, 梶原優介: プラズモニ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), 2015 年春季第 62 回応用物理学学会学術講演会講演予稿集, 東海大学, 12a-A17-6 (2015).

36. 林冠廷, 小宮山進, 金鮮美, 河村賢一, 梶原優介: 機械式冷凍機を用いたパッシブ型 THz 近接場顕微鏡の開発, 2015 年春季第 62

回応用物理学学会学術講演会講演予稿集, 東海大学, 14a-D9-11 (2015).

37. 横山貴文, 林冠廷, 金鮮美, 梶原優介: パッシブ型 THz 近接場顕微鏡による誘電体表面波の観測, 2015 年度精密工学会春季大会学術講演会, 29-30 (2015).

[図書] (計 0 件)

[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: 特許出願

番号: 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: 特許出願

番号: 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]

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: