

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26820123

研究課題名(和文) Graphene terahertz detectors based on plasmons and resonant tunneling

研究課題名(英文) Graphene terahertz detectors based on plasmons and resonant tunneling

研究代表者

TOMBET STEPHANE (TOMBET, STEPHANE)

東北大学・電気通信研究所・准教授

研究者番号：00726911

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、グラフェンを基本要素とし、プラズモンと量子力学的共鳴トンネリングを動作原理として導入した新規なテラヘルツ検出器の開発を目的として遂行した。トンネルバリア絶縁層を単層グラフェンでサンドウィッチしたグラフェン二重層と外部ゲート制御機構を基本素子構造とし、フォトンアシスト共鳴トンネリングとグラフェンプラズモンを検出感度向上を図る新たな動作原理として導入することを試みた。素子の試作評価を通して、提案する素子構造ならびに動作原理の有効性を検証し、素子実現の見通しを得た。

研究成果の概要(英文)：This study was devoted to develop a novel terahertz detector in which the graphene plasmon and quantum-mechanical resonant tunneling are newly introduced as the operation principles. The device consists of a double-graphene-layer in which a tunnel barrier layer is sandwiched by two monolayer-graphene layers and an external gate control element. The device can exploit the photon-assisted resonant tunneling as well as graphene plasmonic resonances as highly sensitive terahertz detection principles. In order to examine the feasibility of the device operation, test devices were fabricated and their property were experimentally measured, confirming the validity of the proposed device structures and the operation principles.

研究分野：工学

キーワード：テラヘルツ グラフェン 検出 プラズモン 共鳴トンネリング

1. 研究開始当初の背景

電波と光波の境界域に位置するテラヘルツ波帯は、安心・安全・医療・情報通信などの多くの産業応用が期待されてきたが、未だ未開拓電磁波領域として取り残されている。その要因は、電子デバイスもフォトニックデバイスもそれぞれの本質的な動作限界に律速され、動作が困難な点にある。特に、室温動作が可能なコンパクト・高出力な光源デバイスと高感度・高速動作が可能な検出デバイスのいずれもが欠如していることが決定要因として、それらの開発が期待されている。そのような中で、炭素原子の単一シート：グラフェンがその特異な光電子物性のために注目され、テラヘルツ応用研究が急激に進展している。さらに、半金属的性質のグラフェンと原子間力のみで積層できる絶縁体や半導体とのヘテロ接合がより高機能・高性能なデバイス構造として注目されはじめていた。

2. 研究の目的

本研究は、グラフェンを基本要素とし、プラズモンと共鳴トンネリングを動作原理として導入した新規なテラヘルツ検出器の開発を目的とする。

3. 研究の方法

原子層オーダーに薄いトンネルバリア絶縁層を単層グラフェンでサンドウィッチしたグラフェン二重層ナノキャパシタ構造をコアシェルとし、外部ゲートでグラフェンのキャリア濃度およびグラフェン間のエネルギーバンドオフセット量を静電的に制御できる素子構造：ゲート制御グラフェン二重層 (G-DGL) を検出デバイス素子構造として新たに導入する。

第一の原理として、フォトンアシスト共鳴トンネリングを導入する。グラフェン層間に直流バイアスを印可して2つのグラフェン層をn型およびp型にドーピングし、さらにゲートバイアスによってp型グラフェンのエネルギーバンドをn型に対して検出したいテラヘルツ波フォトンエネルギーだけ高く設定する。テラヘルツ波フォトンの吸収によってn型グラフェン内の過剰な電子のエネルギーが $\Delta$ だけ上昇し、バンドオフセットによってずれていたn型グラフェンとp型グラフェンの運動量が整合し、n型グラフェン内の過剰電子がp型グラフェンに共鳴トンネリングする(図1)。この巨大なトンネル電流をテラヘルツ波検出の第一の原理として導入する。

第二の原理としてグラフェンプラズモンを導入する。グラフェンおよびゲート電極構造を工夫して、グラフェン内の二次元キャリアの集団振動量子：プラズモンの共鳴周波数をテラヘルツ波対に制御し、これを励起する。プラズモンの遅波の性質によって、共鳴周波数においてテラヘルツ波の吸収係数が激増する。この性質を第二の原理として導入する。

素子の試作評価を通して、提案する原理の実証に挑む。原理検証は、材料・プロセス技

術が成熟している化合物半導体を第一段階として利用し、第二段階として実際にグラフェンによるG-DGLの試作評価へと展開する。

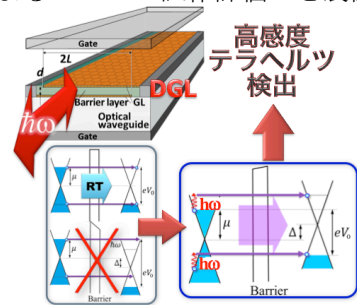


図1. G-DGLにおけるフォトンアシスト共鳴トンネリングとそのテラヘルツ波検出応用.

4. 研究成果

(1) 二次元プラズモンによるテラヘルツ検出

グラフェンプラズモンの効果を検証する第一段階として、材料・プロセス技術とも完成度が高い、化合物半導体ヘテロ接合構造を用いて、二次元電子プラズモンの非線形光整流作用によるテラヘルツ波検出感度向上効果を実験検証した。

InP 基板上に InAlAs バッファ層、InGaAs 二次元電子チャネル層、InAlAs バリア層をヘテロエピタキシャル成長した量子井戸層にゲート電極を積層した高電子移動度トランジスタ構造において、ゲート電極を非対称二重回折格子状に配置した特殊な構造でテラヘルツ波検出素子を設計・試作した(図2)。実験の結果、200~300 GHz 帯、1 THz 帯で各々 20 kV/W, 2 kV/W という従来素子を1桁以上上回る検出感度と極めて低い投下雑音電力を達成した(図3)。検出感度を左右するプラズモンの非線形整流効果はキャリアの運動量緩和時間 $\tau$ に律速され、実験に用いた InGaAs とグラフェンとの $\tau$ の相違 ( $0[0.1 \text{ ps}] / 0[1\sim 10 \text{ ps}]$ )より、グラフェンプラズモンの検出感度向上効果が間接的に推定できる。

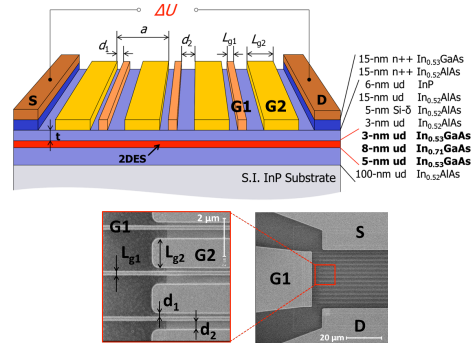


図2. InP系 HEMT テラヘルツ検出素子.

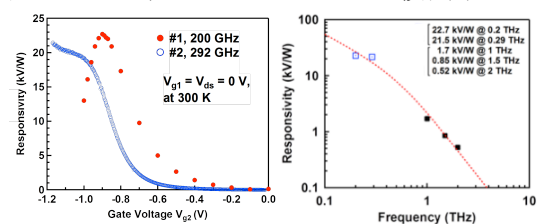


図3. 試作素子の検出感度特性.

(2) G-DGL 素子の試作

実際に G-DGL 素子を試作した (図 4)。SiO<sub>2</sub>/Si 基板状に高品質バルク h-BN 材料および高品質バルクグラファイトからそれぞれ h-BN 層、グラフェン層を剥離・転写して G-DGL の積層構造を作製した。トンネルバリアとなる DGL 内の h-BN 層は原子 4~7 層で構成した。DGL の電極は積層部分を傾斜メサエッチングした際に露出するエッジ部分に電極金属を重ねて蒸着・リフトオフしてオーミック接合を形成した。ゲート電極は導電性 Si 基板を介して Pt/Au 薄膜で形成した。

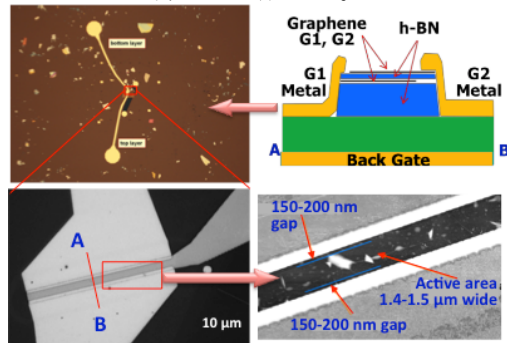


図 4. 試作した G-DGL 素子.

試作した G-DGL 素子の直流電流電圧特性を測定した (図 5)。結果、1 つの試料からは、室温下で、共鳴トンネリングに起因する極めて明瞭な負性微分抵抗特性が観測された。一方、別の素子では、熱電子放出に起因する非共鳴なトンネル電流成分しか観測されなかった。100K まで温度を低下すると、微弱な共鳴トンネル電流成分が観測できた。両者の大きな相違は、DGL を構成する下層と上層のグラフェンの結晶面方位のずれ (回転角度偏差) に起因することが理論解析結果から判明した。現状の作製法では、光学顕微鏡でグラフェンフレークの直線的なエッジを回転方位の基準とし、それらが重なるように転写しているが、その直線エッジがグラフェン格子のジグザグエッジかアームチェアエッジかの判別ができないことが原因で、今後の改善が期待される。

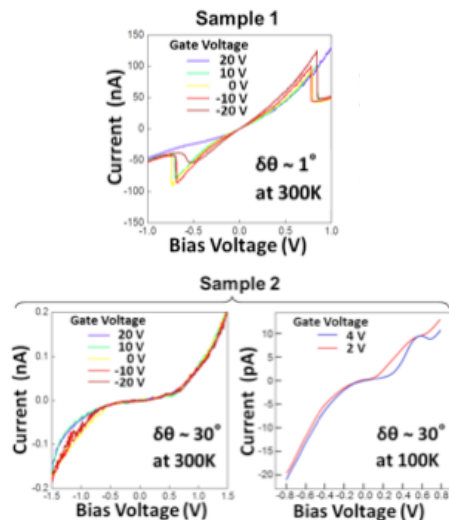


図 5. G-DGL 素子の直流電流電圧特性.

(3) G-DGL 素子によるテラヘルツ波検出

室温下で、テラヘルツ波検出実験を行った。照射用テラヘルツ CW 光源には UTC-PD フォトミキサーを用いた。共鳴トンネルと作用できる TM モードのテラヘルツ光子を照射するために斜め入射の光学系を構築した。

残念ながら室温下で明瞭な負性微分特性を示した G-DGL 素子は静電破壊によって失われたため、室温下では非共鳴のトンネル電流しか生じない素子を用いて実験した。実験の結果、テラヘルツ波照射に伴う光電流成分 (トンネル電流の増加) が明瞭に観測され、バイアス電圧の上昇とともに光電流も単調に増大した (図 6)。この傾向は理論解析と定性的によく一致し (図 6)、第一の動作原理: フォトンアシストトンネリングを非共鳴状態ながらも検証することに成功した。得られた光電流成分と照射テラヘルツ光の空間強度分布より、実効的な検出感度を見積もったところ、1 THz 入射時に 1.55 A/W が得られた。共鳴トンネリングが実現できれば 2 桁程度の感度向上が見込まれ、既存検出感度を 1 桁以上凌駕する極めて高い感度実現が期待できることがわかった。

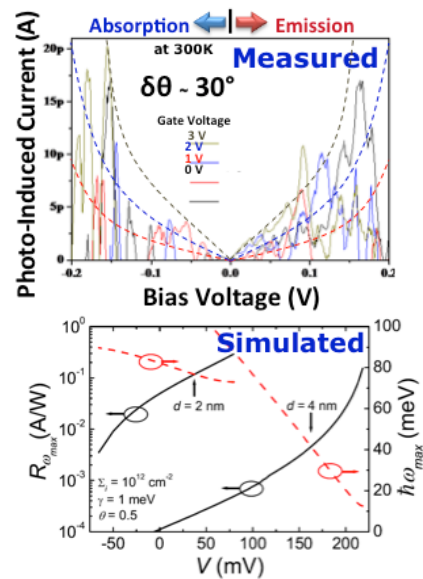


図 6. G-DGL 素子のテラヘルツ波照射時の光電流応答特性.

(4) G-DGL のプラズモンとそのテラヘルツ波検出への応用

グラフェン表面プラズモンの遅波の性質は入射テラヘルツ光子の吸収を格段に高め、それに伴う検出感度の向上が期待できる。G-DGL 素子では 2 つの空間的に近接したグラフェン層内のプラズモンの位相状態によって、光学モードと音響モードの 2 つのモードが励起される (図 7)。このうち、音響モードは DGL 間のポテンシャルを変調するため、音響モードプラズモンで共鳴トンネルをアシストすることができ、その結果、テラヘルツ波の検出感度や放射強度の格段の向上が期待できる。注意すべきは、グラフェンプラズモンを励起できる TE モードのテラヘルツ

光子は共鳴トンネルとは相互作用できないことであり、本研究ではゲート電極を回折格子状に構成して、TE-TMモード結合・変換機構を与えた(図7)。限られた研究期間の中では実験検証までは至らなかったものの、数値解析によってその感度向上を見積もり、検出感度向上の見通しを得た(図7)。

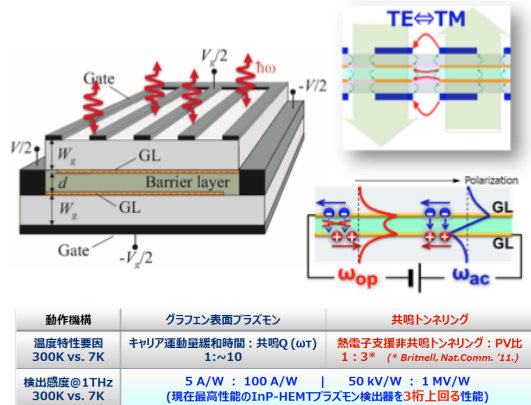


図7. G-DGLの音響モードプラズモンによるテラヘルツ検出感度増強効果。

(5) 新たな展開：G-DGLのテラヘルツ波放射

G-DGLのゲートバイアス制御でp型グラフェンのバンドオフセット $\Delta$ をn型グラフェンに対して低く設定( $\Delta < 0$ )すれば、そのオフセット量に等しいテラヘルツ光子を放出・発光して共鳴トンネリングが実現できる。この場合、n型グラフェン内の過剰電子全てが単色テラヘルツ光子の発光に寄与で切るため、グラフェン単体に比して極めて大きな利得獲得が実現でき、テラヘルツレーザーとしての高い量子効率、低いレーザー発振閾値実現が期待できる。これを試作したG-DGL素子を用いて実験検証することに成功した。

試作素子には100Kの低温下で微弱な負性微分抵抗が現れたことから、100Kでのテラヘルツ放射スペクトルのバイアス依存性をフーリエ遠赤外分光計とSiボロメータを用いて観測した(図8)。その結果、テラヘルツ光子の発光が期待される $\Delta < 0$ となるバイアス条件下のみで、テラヘルツ放射が観測された。観測された放射スペクトルがブロードであることは、グラフェン層間の大きな回転角度偏差のために共鳴トンネリングは極めて微弱であり、共鳴Q値も低いことに対応しており、定性的に説明できる。

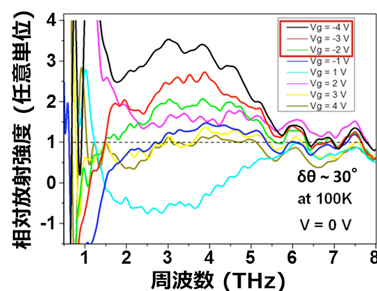


図8. G-DGL素子のテラヘルツ放射特性。

以上の結果より、G-DGL素子構造が将来の高感度テラヘルツ検出器、および高強度テラヘルツレーザーの実現に有効であることの見通しを得た。

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18件) 代表的成果を以下に挙げる。

- [1] S. Boubanga Tombet, D. Yadav, S. Arnold, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Emission and detection of terahertz radiation in double-graphene-layer van der Waals heterostructures," The 40th Int. Conf. on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves Dig., 査読有, Vol. 1, pp. H1D-1-1-2, 2015. DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2015.7327487
- [2] F. Kasuya, T. Kawasaki, S. Hatakeyama, S. Boubanga Tombet, T. Suemitsu, T. Otsuji, G. Ducournau, D. Coquillat, W. Knap, Y. Takida, H. Ito, H. Minamide, D.V. Fateev, V.V. Popov, Y.M. Meziani, A. Satou, "Broadband characteristics of ultrahigh responsivity of asymmetric dual-grating-gate plasmonic terahertz detectors," The 40th Int. Conf. on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves Dig., 査読有, Vol. 1, pp. WS-45-1-2, 2015. DOI: 10.1109/IRMMW-THz.2015.7327926
- [3] D. Yadav, S. Boubanga Tombet, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Terahertz emitters and detectors based on double-graphene-layer Van der Waals heterostructures," DRC: the 73rd Device Research Conference Digest, 査読有, Vol. 2, pp. 271-272, 2015. DOI: 10.1109/DRC.2015.7175678
- [4] D. Yadav, S. Boubanga Tombet, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Terahertz emission in double-graphene-layer structure," CLEO: Int. Conf. on Lasers and Electro-Optics Tech. Dig., 査読有, Vol. 1, pp. STu2H.3-1-2, 2015. DOI: 10.1364/CLEO\_SI.2015.STu2H.3
- [5] T. Otsuji, A. Dubinov, M. Ryzhii, S. Boubanga Tombet, A. Satou, V. Mitin, M.S. Shur, V. Ryzhii, "Graphene active plasmonics for terahertz device applications," Proc. SPIE, 査読有, Vol. 9476, pp. 94760Y-1-11, 20, 2015. (invited) DOI: 10.1117/12.2185118
- [6] T. Watanabe, T. Kawasaki, A. Satou, S.A. Boubanga Tombet, T. Suemitsu, G. Ducournau, D. Coquillat, W. Knap, H. Minamide, H. Ito, Y.M. Meziani, V.V.

- Popov, and T. Otsuji, "Room-temperature zero-bias plasmonic THz detection by asymmetric dual-grating-gate HEMT," Proc. SPIE, 査読有, Vol. 9362, pp. 93620F-1-7, 2015. DOI: 10.1117/12.2079184
- [7] T. Otsuji, V. Ryzhii, S. Boubanga Tombet, T. Watanabe, A. Satou, M. Ryzhii, A. Dubinov, V. Ya Aleshkin, V. Popov, V. Mitin, and M.S. Shur, "Graphene plasmonic heterostructures for new type of terahertz lasers," Proc. SPIE, 査読有, Vol. 9199, pp. 91990F-1-10, 2014. (invited) DOI: 10.1117/12.2061510
- [8] T. Otsuji, A. Satou, S. Boubanga Tombet, V. Ryzhii, V.V. Popov, and M.S. Shur, "Graphene plasmonic heterostructures for terahertz device applications," Proc. 16th Int. Conf. on Laser Optics 2014 Proc., 査読有, Vol. 1, p. Th-RB-36-1, 2014. (invited) DOI: 10.1109/LO.2014.6886421
- [9] S.A. Boubanga Tombet, Y. Tanimoto, A. Satou, T. Suemitsu, Y. Wang, H. Minamide, H. Ito, D. V. Fateev, V.V. Popov, and T. Otsuji, "Current driven detection of terahertz radiation in dual-grating-gate plasmonic detector," Appl. Phys. Lett., 査読有, Vol. 104, pp. 262104-1-4, 2014. DOI: 10.1063/1.4886763
- [10] Y. Kurita, G. Ducournau, D. Coquillat, A. Satou, K. Kobayashi, S.A. Boubanga Tombet, Y.M. Meziani, V.V. Popov, W. Knap, T. Suemitsu, and T. Otsuji, "Ultrahigh sensitive sub-terahertz detection by InP-based asymmetric dual-grating-gate high-electron-mobility transistors and their broadband characteristics," Appl. Phys. Lett., 査読有, Vol. 104, pp. 251114-1-4, 2014. DOI: 10.1063/1.4885499
- [1] T. Otsuji, S.A. Boubanga Tombet, and V. Ryzhii, "Double-graphene-layer van der Waals heterostructures for terahertz device applications," MRS Fall Meeting, Symposium Q: Nano Carbon Materials -1D to 3D, Boston, MA, USA, 1 Dec. 2015. (invited)
- [2] S. Arnold, D. Yadav, S. Boubanga Tombet, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Terahertz detection in double-graphene-layer heterostructures," FTT: Int. Conf. Frontiers in Terahertz Technology, Congress Center in ACT CITY, Hamamatsu, Japan, 31 Aug. 2015.
- [3] S. Boubanga Tombet, D. Yadav, S. Arnold, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Emission and detection of terahertz radiation in double-graphene-layer van der Waals heterostructures," IRMMW-THz 2015: the 40th Int. Conf. on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, The Chinese University of Hong Kong, Hong Kong, China, 27 Aug. 2015.
- [4] F. Kasuya, T. Kawasaki, S. Hatakeyama, S. Boubanga Tombet, T. Suemitsu, T. Otsuji, G. Ducournau, D. Coquillat, W. Knap, Y. Takida, H. Ito, H. Minamide, D.V. Fateev, V.V. Popov, Y.M. Meziani, A. Satou, "Broadband characteristics of ultrahigh responsivity of asymmetric dual-grating-gate plasmonic terahertz detectors," IRMMW-THz 2015: the 40th Int. Conf. on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, The Chinese University of Hong Kong, Hong Kong, China, 26 Aug. 2015.
- [5] S. Boubanga Tombet, "Plasmon-resonant terahertz emitters and detectors and their system applications," Int. Conf. on Nanotechnology Congress & Expo, Fleming's Conference Hotel, Frankfurt, Germany, 12 Aug. 2015. (invited)
- [6] T. Otsuji, A. Satou, S.A. Boubanga Tombet, V. Ryzhii, V.V. Popov, V. Mitin, and M.S. Shur, "Emission and detection of terahertz radiation using two-dimensional plasmonic metamaterials," META'15: The 6th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics, The City College of New York, New York, USA, 4-7 Aug. 2015. (invited)
- [7] T. Otsuji, A. Satou, S. Boubanga Tombet, T. Watanabe, G. Ducournau, Y.M. Meziani, W. Knap, and V.V. Popov, "Plasmonic terahertz emitters and detectors for sensing and wireless communications," PIERS 2015 in Prague: The 36th Progress in Electromagnetics Research Symposium, Prague, Czech Republic, 7 July 2015. (invited)
- [8] S. Boubanga Tombet, D. Yadav, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Terahertz emission in a double-graphene-layer heterostructure," EDISON: the 19th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures, Salamanca, Spain, 29 June, 2015.
- [9] S. Boubanga Tombet, "Plasmon-resonant terahertz emitters and

[学会発表] (計20件) 代表的成果を以下に挙げる。

- detectors and their system applications," 2015-Collaborative Conference on 3D and Materials Research (CC3DMR), BEXCO, Busan, South Korea, June 16, 2015. (invited)
- [10] S. Boubanga Tombet and T. Otsuji, "Emission and detection of THz radiation using graphene and III-V semiconductor heterostructures," CMOS-ETR: Int. Symp. On CMOS Emerging Technologies Research, Vancouver, Canada, 20 May 2015. (invited)
- [11] D. Yadav, S. Boubanga Tombet, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Terahertz emission in double-graphene-layer structure," CLEO: Int. Conf. on Lasers and Electro-Optics Tech., San Jose, CA, USA, 12 May 2015.
- [12] T. Otsuji, A. Dubinov, M. Ryzhii, S. Boubanga Tombet, A. Satou, V. Mitin, M.S. Shur, V. Ryzhii, "Graphene active plasmionics for terahertz device applications," SPIE Defense + Security, and Sensing Technology + Applications, Conference 9476 on Automatic Target Recognition XXV, Baltimore, MD, USA, April 22, 2015. (invited)
- [13] T. Otsuji, S. Boubanga Tombet, and V. Ryzhii, "Recent advances in graphene heterostructures toward the creation of terahertz lasers," Graphene 2015: 5th Edition of the European Conference in Graphene and 2D Materials, Imaginano, Bilbao, Spain, 13 March 2015. (invited)
- [14] S. Boubanga Tombet, D. Yadav, T. Watanabe, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Terahertz emission in a double-graphene-layer heterostructure," OTST: Int. Conf. on Optical Terahertz Science and Technology, San Diego, CA, USA, 10 March 2015.
- [15] S.A. Boubanga Tombet, A. Satou, V.V. Popov, and T. Otsuji, "THz detection using a dual-grating-gate plasmonic detector," TeraNano-V: The Fifth International Symposium on Terahertz Nanoscience, Martinique, Fort de France, 4 Dec. 2014.
- [16] S. Boubanga Tombet, T. Otsuji, V. Popov, and W. Knap, "Plasmon-resonant terahertz emitters and detectors and their system applications," ICMNE: Int. Conf. on Micro and Nano-Electronics, Zvenigorod, Moscow Region, Russia, 8 Oct. 2014. (invited)
- [17] S. Boubanga Tombet, T. Otsuji, A. Satou, A.A. Dubinov, V.V. Popov, and

V. Ryzhii, "Graphene active plasmonics for new types of terahertz laser," Condensed Matter in Paris, Paris, France, 25 Aug. 2014.

- [18] T. Otsuji, A. Satou, S. Boubanga Tombet, V. Ryzhii, V.V. Popov, and M.S. Shur, "Graphene plasmonic heterostructures for terahertz device applications," 16th Int. Conf. on Laser Optics 2014, St. Petersburg, Russia, 3 July 2014. (invited)

[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

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

TOMBET STEPHANE (TOMBET, Stephane)

東北大学・電気通信研究所・准教授

研究者番号：00726911

### (2) 研究分担者

(該当なし)

### (3) 連携研究者

(該当なし)

### (4) 研究協力者

尾辻 泰一 (OTSUJI, Taiichi)

末光 哲也 (SUEMITSU, Tetsuya)

佐藤 昭 (SATOU, Akira)

リズイー ヴィクトール (RYZHII, Victor)

渡辺 隆之 (WATANABE, Takayuki)

ヤダフ ディーピカ (YADAV, Deepika)

栗田 裕紀 (KURITA, Yuki)

ポポフ ヴィチェスラブ (POPOV, Vyacheslav)