

ニッポン放送賞

非破壊・非接触検査における新産業創造への挑戦

～ナノカーボンを用いたテラヘルツ帯フレキシブル撮像デバイスの開発と応用～

東京工業大学 理工学研究科 電子物理工学専攻
博士課程1年

鈴木 大地

1. 緒言

電磁波の活用は我々の生活や産業、基礎科学といった多分野において大きな変革をもたらしてきた。今日の快適な生活を下支えしている電磁波技術だが、一口に電磁波の活用といってもラジオやテレビ、無線通信やレーダー、熱源やLED、X線検査から放射能に至るまで、電磁波の特性はその周波数帯によって千差万別に変化し、それゆえ様々な応用例を見せる。その特徴に魅せられ、科学者達は新産業の創造に向け広大な周波数帯の開拓に精進し、その成果と共により利便性の高い生活基盤が築かれてきたという歴史がある。この中でテラヘルツ (THz) 帯と呼ばれる周波数300GHzから30THzの領域に位置する電磁波は、電波としての透過性や光波としての直進性、水に対する高い吸収率、固体中電子や高分子の物性解析に有力といった特性を有していることから、非破壊・非接触での金属探知や爆発物検知、ICカードの偽造防止、農作物のモニタリング、医療・薬学応用といった様々な応用例が期待されている(図1)[1-3]。しかしながら、この周波数帯はエレクトロニクスによる電子制御としては高周波の極限であり、オプティクスやフォトニクスによる光制御としては低エネルギーの極限であることから、他の周波数帯に比べて発振器や検出器という基本的な素子ですら満足に動作するものが存在しないという技術的な問題を抱えている。そのため、周波数帯開拓の長い歴史の中でもTHz帯は未開拓な領域とされてきた。ところが、近年のナノデバイスやレーザーの技術革新[4]に後押しされTHz帯の技術は急速に発展を遂げており、小型で室温発振する光源[5, 6]やチューナブルなTHz検出(分光)器[7]、回折限界を超える近接場THz撮像[8]等、様々な基礎研究が確立されつつある。まさにTHz帯の電磁波は基礎研究から産業展開へ向け舵を切り始めた時代であるといっても過言ではなく、関連する研究者や企業において産業展開に向けた課題を如何にして克服するか現実的に検討する段階に入ってきている。

この流れの中でTHz帯検出器に着目すると、研究室での実験レベルで使用可能な室温動作THz帯検出器が販売され始めているが、産業展開に向けては感度が低い、検出可能な周波数帯域が限られている、硬い固体素子なのでバイオスキャン等歪曲した物体への応用に向かないといった問題があり、THz帯技術の応用実現を大きく阻んでしまっている。それを受け、本研究では既存のTHz帯検出器の問題点を解決する広帯域・高感度・フレキシブルな撮像デバイスの開発、及び遮蔽物背後の金属探知・人の手の画像観察等THz帯応用のデモンストレーションを実施した[9]のでこれを報告し、本研究の今後の展開や、非破壊・非接触検査における新産業創造に向けた意欲

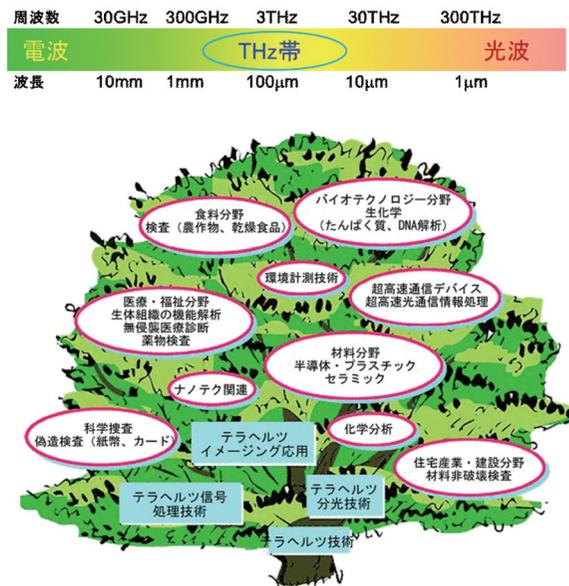


図1 THz帯の位置付けと技術の広がり。
(<http://www.terahertzjapan.com>)

について述べる。

2. 検出器の動作原理と単一素子の小型・高感度化

前節では、THz 帯の電磁波を取り巻く近況や既存の検出器の問題点等を紹介した。本節では、我々の検出器の動作原理に加え、撮像デバイス開発に向けた検出器の高感度・小型化について述べる。

電波と光波の中間に位置する THz 帯が持つ特徴的な面白さとして、電磁波を電波(波)として検出する方法と光波(エネルギー)として検出する方法の両方からアプローチできる点が挙げられる。それぞれの検出方法において一長一短の特徴があるため、応用先を見据えて適切な検出方法を用いる必要があるが、THz 帯の産業展開に向けては、ことさら室温動作で高性能な THz 検出器が強く求められている。しかしながら、THz 波の光子エネルギー(数 meV)は室温の熱エネルギー(約 26 meV)よりも低いため、必然的に室温で効率的に THz 波を吸収・検出する材料や機構が少なく、検出には新たなアプローチが求められている。現在の室温動作可能な検出器として、焦電検出器、ゴレーセル、ショットキーバリアダイオード、光伝導アンテナなど[10, 11]があるが、低感度であることや検出可能な周波数帯域が狭い、フレキシビリティを持たないといったことが課題となっている。そこで、本研究では近年注目を集めるナノカーボン材料の一種であるカーボンナノチューブ(CNT)に着目した。CNTをはじめ、グラフェン、フラーレンといったナノカーボン材料は、次世代の高性能電子材料として産官学での研究が盛んに行われており、高い電気伝導性と機械的強度を兼ね備えていることが大きな利点である。多数のCNTを集積化した膜は自由に折り曲げることが可能であり、通常のシリコン等の半導体にはないユニークな特徴を有する(図2a)。そのため、チップキャリア等にCNT膜を乗せるだけで容易に架橋構造を形成することができるため、複雑な微細加工技術を用いて架橋構造を作製する必要がない。これは将来の産業応用を見据えた場合、低コストで作製可能という高い優位性を有していることを意味する。加えて、CNTの特異なバンド構造に起因して、THz帯を含む広い周波数帯において強い吸収特性を観測することができており(図2b)、このことからCNTは次世代のTHz帯フレキシブル検出器の材料として最有力であると考えた。

上記のような特徴から、THz帯検出器にCNTを用いる試みは以前からなされており、10年程前から近赤外光[12]やTHz帯での検出例が報告されているが、検出原理にボロメトリック効果や量子効果を用いることが主流であったため、検出効率が悪い、もしくは、検出効

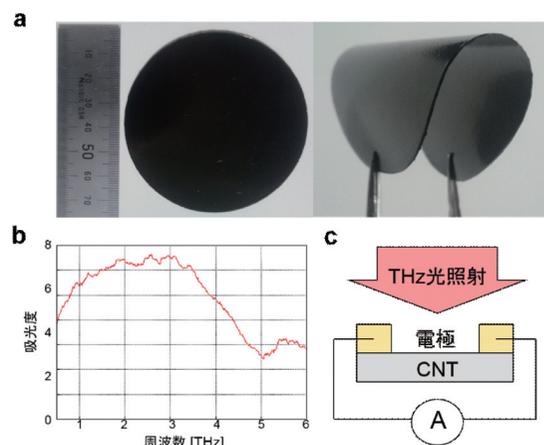


図2 (a) 高面積かつフレキシブルなCNTフィルム。(b) THz-TDSによる吸光度測定結果。THz帯の幅広い周波数領域において99%以上の強い吸収特性を観測。(c) 検出器の概念図。[9]

率が高いが極低温環境下でしか動作しないとといった問題があった。そこで本研究ではこの問題を解決するために、光熱電効果を検出原理に用いることを考えた。光熱電効果とは熱電効果の一種であり、電磁波の照射によって異種材料間に温度差を発生させることで、ゼーベック効果により起電力が発生するという現象である。この原理を用いて室温で動作する THz 帯検出器 (図2c) を作製し、THz 帯電磁波の検出特性を計測した。図3 (a) が検出器の電流 - 電圧特性と、それぞれ0.14, 1.4, 39THz の電磁波を照射した際の応答である。電磁波照射に伴い電極間に電流ないし電圧の検出信号が発生しており、この結果から本検出器が0.14~39THz という THz 帯全領域をカバーする広帯域 THz 帯検出器として動作していることがわかる。また、検出器の性能指標であるノイズ電流値を評価した。ノイズ電流値は、検出器が発するノイズの大きさを表しており、この値以下の検出信号は読みだすことができないことから、検出感度の重要な指標の一つとして用いられる。本検出器はゼロ電圧バイアス下で動作可能であるため、ノイズ増加の原因となるショットノイズやピンクノイズ (1/f ノイズ) を抑制することができるという優れた利点がある。実際にノイズ密度スペクトル測定を行ったところ、ノイズ電流値が熱雑音の理論値 (抵抗6Ω、温度300K で $52\text{pA}/\sqrt{\text{Hz}}$) に相当する下限値まで低減していることがわかった (図3b)。このことから本検出器が既存の検出器 [13] と比較して超低ノイズ (高感度) な検出器として動作しているといえる。

次に、THz 応答電流の位置依存性を測定すると、起電力は電極と CNT の異種材料間で発

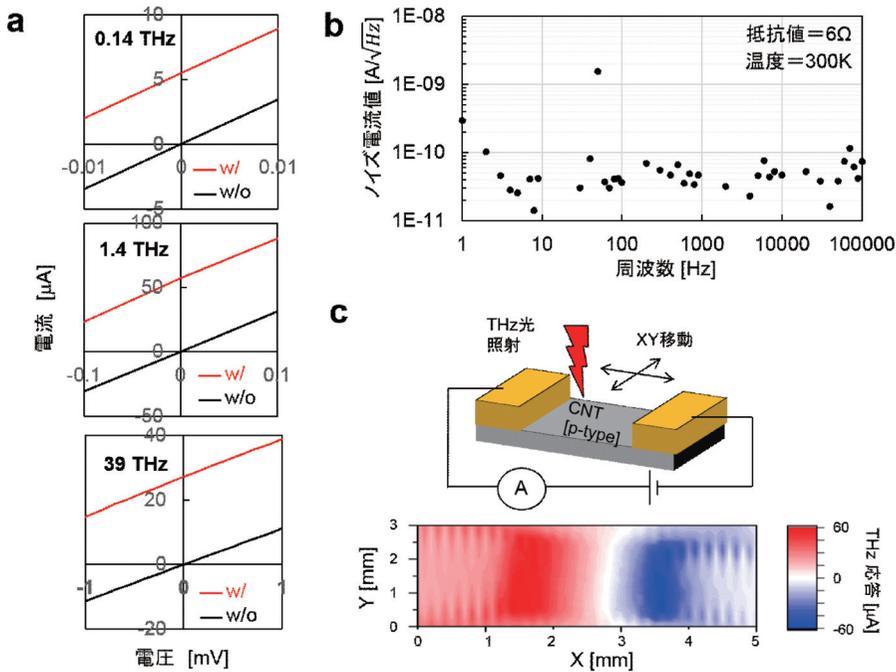


図3 (a) THz 帯 (0.14, 1.4, 39THz) における検出特性。電流ないし電圧の検出信号が観測できる。(b) ノイズ電流値の周波数特性。ノイズ電流値が熱雑音の理論値 ($52\text{pA}/\sqrt{\text{Hz}}$) まで低減している。(50Hz でピークが出ているが、これは測定装置の電源の影響であり、デバイス由来のノイズ電流値ではない。) (c) 光熱電効果 (29THz) の位置依存性。キャリアが正孔であるため電源側では正、GND 側では負の電流応答を示す。[9]

生し、その極性は正負真逆の応答となっていることがわかった(図3c)。この現象は検出原理に起因するものであり、すなわち、光熱電効果は異種材料間で発生することから応答は電極とCNTの界面で強く発生し、また、温度差によってCNT中のキャリアが拡散して応答が発生することから、極性は正負真逆の応答になる。なお、本検出器ではP型のCNTを用いているため、電磁波照射による界面の温度上昇に伴い、正孔がCNT方向に流れるため、電源方向の電極では正の、GND方向の電極では負の応答が出る。材料にN型のCNTを用いた場合は真逆の応答になるため、この結果からも本検出器が光熱電効果を検出原理に用いていることが確認できる。

次に、撮像デバイス開発の必要条件である検出器の小型化を試みた。まず各検出器を小型に作り、8素子を等間隔に集積した撮像デバイスを作製した。しかしながら、検出器を小型にすると各素子の応答信号が極端に微弱なものになり、信号を読みだすことができないという問題が発生した。この現象を深く考察したところ、検出原理の特徴に起因する現象であることが判明した。先に述べたように、光熱電効果は両電極界面で逆極性の応答を示すため、両方の電極に同強度の電磁波を同時に照射した場合、起電力が相殺して応答信号がゼロになってしまう。したがって、検出器を小型にすることで電極間隔が電磁波の照射スポットサイズを下回ると、電磁波の検出ができなくなってしまうのである。

そこで、この問題を解決するために電極材料の最適化に着目した。検出原理に基づくと、光熱電効果はCNTと電極の界面で強く発生するため、必然的に、THz応答強度は電極の条件に依存すると考えたからである。応答強度の電極材料依存性及び膜厚依存性を測定した結果を図4に示す。実験の結果、光熱電効果は電極材料の熱伝導度が高いほど、また、同種の材料の場合膜厚が厚いほど応答が強くなるという結果が得られた。さらに、CNT内部の熱分布を解析した結果を図5に示す。シミュレーション結果をみると、CNT内部の温度勾配は電極材料及び膜厚に強く依存し、そのため、THz応答強度はこれらに強く依存するという、実験結果と良く一致する傾向を確認することができた。

この結果は、電極金属が一種の熱源のような役割を果たしていることを示唆している。CNTは照射された電磁波を吸収し発熱するが、電極と接している部分では熱が急激に電極側に抜ける。そのため、シミュレーション結果(図5b)に示すように、まず電極全域の温度が上がり、次に電極が接触している部分のCNTの温度が上昇する。結果として、電極界面

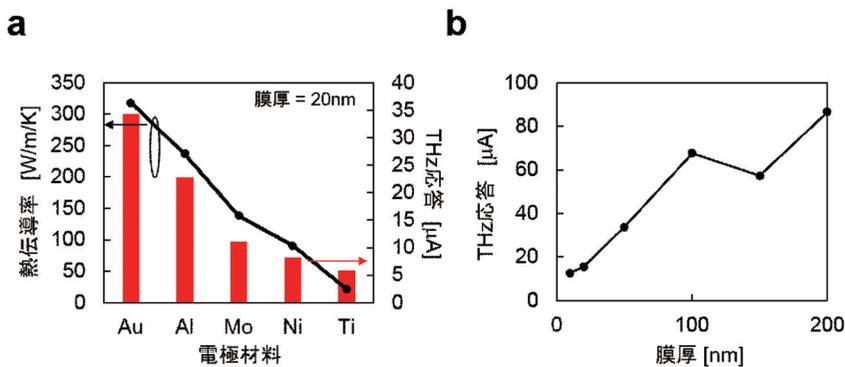


図4 (a) 検出信号の電極材料依存性。金属の熱伝導度が高いほど強い応答を示している。(b) 検出信号の金属膜厚依存性(Au)。膜厚が厚いほど強い応答を示している。[9]

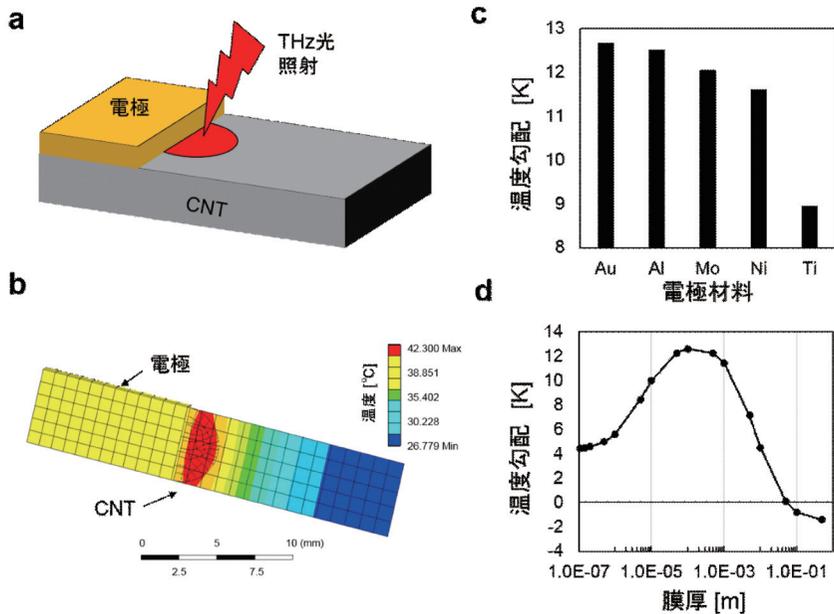


図5 (a) 熱解析シミュレーションのモデル図。電極とCNTの界面にTHz光を照射した際の熱分布を解析する。(b) シミュレーション結果。CNT内部の熱分布をみると、電極がある部分が高温に、電極がない部分が低温になっている。(c) 温度勾配の電極材料依存性。(d) 温度勾配の金属膜厚依存性。[9]

のCNT内で大きな温度勾配が生じる。この温度勾配によってキャリアが電極側からCNT側に熱拡散し応答が発生するのである。加えて、シミュレーション結果(図5d)をみると、温度勾配を最大にするには適切な金属膜厚があるという面白い特性が得られた。一般的に、金属膜厚が厚くなるほど電極の熱伝導度は高くなるため温まりやすくなるが、同時に、電極から空气中に放出される熱の総量も電極の表面積に比例するため冷めやすくなる。すなわち、THz光照射に伴う発熱の総量よりも空气中への放熱の総量が上回ると、電極金属が熱源ではなくヒートシンクの役割を果たすようになるのである。

本研究により、THz 応答強度は金属の熱伝導度及び膜厚に依存するという新規の知見が得られた。この結果は検出器の高性能化に向けて2つの大きな利益をもたらしている。1つ目は、電極材料に熱伝導度の高い金属を用いて適切な膜厚にすることで、検出器の更なる高感度化が実現できること。そして2つ目は、電極ごとのTHz 応答強度を変えるこ

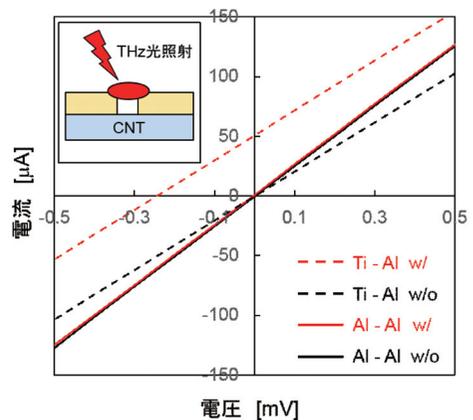


図6 同種金属と異種金属の電流 - 電圧特性。同種金属では起電力が相殺するため応答が読み取れないが、異種金属の場合明確な応答が得られる。[9]

とで、起電力の相殺を回避することが可能になることである。すなわち、片側の電極を熱伝導度の高い材料にし、もう片側の電極を熱伝導度の低い材料にすることで、両方の電極に同強度の電磁波を照射した場合でも、発生した熱が熱伝導度の高い電極に支配的に拡散するため、大きな検出信号を得ることができるのである。同種金属と異種金属を用いて作製した検出器の実験結果を図6に示す。理論通り、両方の電極にAlを用いた検出器では応答が微弱で読み取れないが、AlとTiをそれぞれの電極に用いた検出器では明確な応答を得ることができた。本実験結果は、検出器の更なる高感度化及び撮像デバイス作製に向けた小型化を可能にする重要な結果であるといえる。

3. フレキシブル撮像デバイスの開発と THz 帯画像観測応用のデモンストレーション

前節において、THz 帯全領域で動作する広帯域・高感度・小型な検出器を作製することに成功した。本節では検出器を集積させたフレキシブルな撮像デバイスの開発及び、THz 帯画像観測応用のデモンストレーションについて述べる。

前述の通り、本研究で得た異種材料を電極に用いるという技術により、検出器の小型化を阻む問題を解決することができた。そこで、THz 帯応用実現に向け8素子を等間隔に集積した撮像デバイスを作製し、THz 帯でのイメージング(一次元スキャン)を実施した結果を図7に示す。図7(b)(c)が同種金属(Al)を電極に用いた撮像デバイスの透過イメージと単一素子の検出信号であり、図7(d)(e)が異種金属(Al及びTi)を電極に用いた撮像デバイスの透過イメージと単一素子の検出信号である。透過イメージを比較すると、同種金属を電極に用いた場合測定対象の形状が全くわからないのに対し、異種金属を用いると明瞭な透過イメージ(XYZ)が得られていることがわかる。より詳細に単一素子の検出信号を比較してみると、

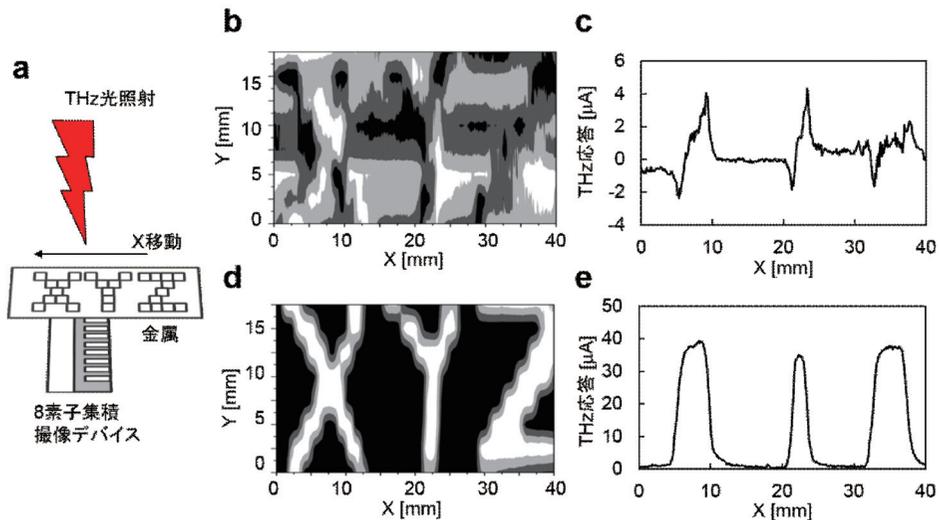


図7 (a) 8素子集積撮像デバイス及びイメージング測定概念図。(b) 同種金属を用いた撮像デバイスの透過イメージ及び(c)単一素子の検出信号。(d) 異種金属を用いた撮像デバイスの透過イメージ及び(e)単一素子の検出信号。[9]

同種金属では応答電流が低くかつ両方の電極で応答することから正負のエッジが立った検出信号となってしまうのに対し、異種金属では片側の電極でのみ応答が出るため、明瞭な単一ピークの検出信号となっていることがわかる。これにより、本撮像デバイスを用いたTHz帯イメージング(一次元スキャン)に成功したといえ、また、撮像デバイスには異種電極を用いることが有力であるといえる。

次に、単一検出器を用いたTHz帯透過イメージング(二次元スキャン)を実施した(図8)。図8の写真のように、可視光では遮蔽物の後ろに何が隠されているか検知することはできないが、THz帯の特徴である透過性を利用することで、図8の透過イメージのように遮蔽物の後ろに隠された金属(ワッシャーやクリップ)を明瞭に検知することができる。これにより、本研究成果を用いてTHz帯での非破壊・非接触による金属探知のデモンストレーションに成功したといえる。

次に、本研究成果の知見を集積したフレキシブル撮像デバイスを作製した。図9(a)がデバイス図であり、1mm間隔で23素子の検出器を集積したCNTフィルムをプラスチックフィルムに固定し、各素子からフィッシャーコネクタに導線をつなげた構造となっている。これにより撮像デバイスをフレキシブルに駆動させることができるため、歪曲した測定対象であっても測定が可能となっている。本研究において多数の検出信号を同時に読み出し、画像化するためのハードウェア・ソフトウェアを構築した。図9(b)にフレキシブル撮像デバイ

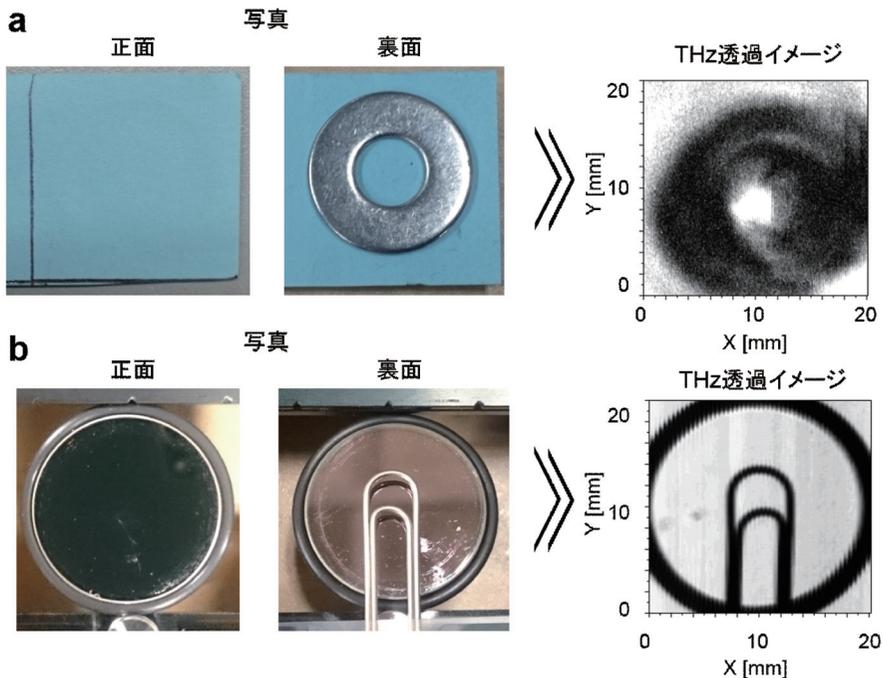


図8 THz帯透過イメージングのデモンストレーション。(a) 0.14THzを用いた透過イメージング。(b) 29THzを用いた透過イメージング。0.14, 29THzの両方のイメージングについて、遮蔽物を透過して後ろに隠された金属を検知できていることがわかる。解像度は光源の波長に依存するため、29THz(波長10m)のほうが0.14THz(波長2.1mm)より明瞭な画像が得られている。[9]

スの測定概念図を、図9(c)に透過イメージの測定結果を示す。図に示したとおり、測定対象が歪曲した物体であっても明瞭な透過イメージが得られていることがわかる。これにより、THz帯でのフレキシブルイメージングのデモンストレーションに成功したといえる。最後に、本フレキシブル撮像デバイスを用いて、イメージング应用到に必須といえる無光源測定を試みた。一般的にイメージングを行う場合、外部光源を用いて測定対象の透過光ないし反射光を検出し分析する方法と、電子・分子の振動に伴う放射や黒体放射といった測定対象自身が放出する電磁波を検出し分析する方法の二種類があり、応用先によって使い分ける必要がある。しかしながら、後者の場合測定対象が放つ微弱な信号を検出するため、高感度な検出器が必須となる。そこで、本撮像デバイスの特徴である高感度・フレキシブルを活かし、無光源環境下でのバイオスキャンを実施した(図9d)。図9(e)に測定結果を示す。手自体が発する熱放射を撮像デバイスが感知して、無光源環境下においても明瞭な手の撮像ができている。これにより、本撮像デバイスを用いてフレキシブル無光源イメージングのデモンストレーションに成功したといえる。

以上の結果から、THz撮像技術の医療応用に向けて大きく前進したと言える。THz計測により、がん細胞、血栓、汗、虫歯等の非侵襲検査が可能であり[14, 15]、臨床応用に向けた検討が進んでいる。本撮像デバイスはフレキシブルで生体系の形状にフィットするという他にはない長所を有するため、医療検査に向けた強力な手段となることが期待できる。日常生活でもリアルタイムで検査可能な“ウェアラブル医療端末”としての活用も可能となろう。また、有機物から構成される薬はTHz帯に特徴的な吸収を示す(指紋スペクトル)ため、

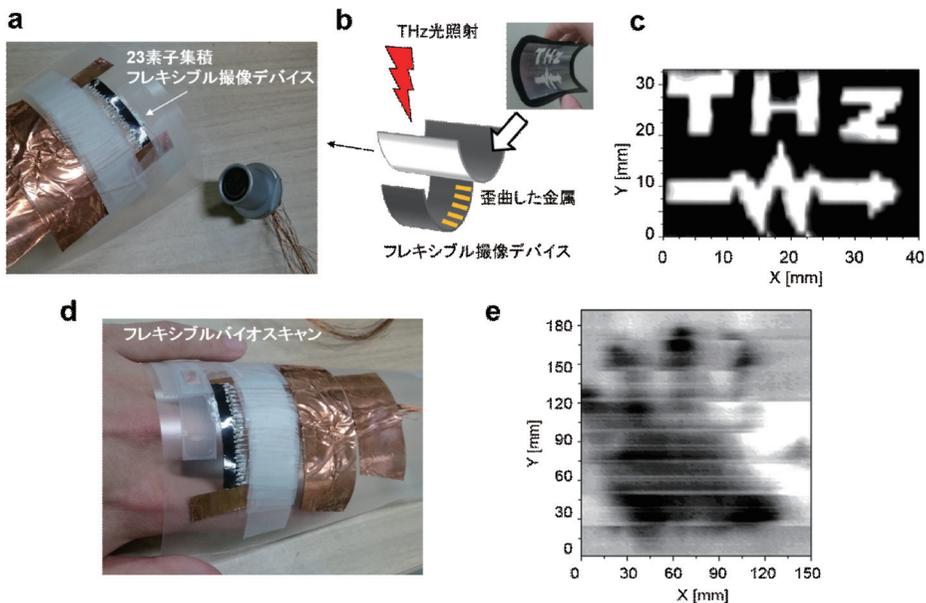


図9 (a) フレキシブル撮像デバイスの写真。(b) フレキシブルイメージングの概念図 (c) フレキシブル透過イメージの測定結果。測定対象が歪曲した物体でも明瞭なイメージが得られている。(d) フレキシブルバイオスキャンの測定図。(e) バイオスキャンの測定結果。手からの熱放射を感知して、無光源環境下においてもイメージングできていることがわかる。[9]

THz 撮像は薬の分析にも有効である [16]。今後、法律の改正により、目視による検査以外の手段が義務化されることが見込まれているため、現在、本撮像技術の適用を進めている。

本研究により、非破壊・非接触での金属探知や混入異物検査、生体検査や薬学応用といった様々な THz 帯技術の応用実現への大きな可能性を示す成果を挙げることができた。

4. まとめと今後の展望

本研究では、THz 帯技術の応用実現にむけ、広帯域・高感度・フレキシブルな撮像デバイスの開発及び遮蔽物背後の金属探知・人の手の画像観察等 THz 帯応用のデモンストレーション実現を目標に研究を実施した。その結果、ナノカーボン材料における光熱電効果を用いることで、0.14～39THz の THz 帯全領域をカバーする広帯域検出に成功した。また、光熱電効果の応答強度が金属の熱伝導度及び膜厚に依存して強くなるという現象を明らかにし、単一検出器の高感度化及び小型化に成功した。最終的に、得られた知見を活用して THz 帯で動作するフレキシブル撮像デバイスを開発し、非破壊・非接触による金属探知のデモンストレーションや、歪曲した測定対象のフレキシブルイメージング及び無光源環境下における人体のスキャンに成功した。

時代と共に周波数開拓が進み、今や我々の生活の様々な場面で必要不可欠となっている電磁波技術。この周波数開拓の長い歴史において検出の困難さから未開拓とされ、「未来の技術」と揶揄されることもあった THz 帯技術。その技術の実用化は、もはやそう遠くないところにまで来ている。THz 帯技術が持つ産業応用へのポテンシャルは非常に高く、空港での金属探知や爆発物検知、食品への異物混入検査、農作物のモニタリング、生体検査・薬学応用といった様々な分野において、既存の技術では成し得ない恩恵や革新をもたらしてくれるだろう。私は、本研究成果が THz 帯応用実現への大きな架け橋となることを信じており、非破壊・非接触検査における新産業創造に繋がることを期待している。そのためにも、引き続き THz 帯フレキシブル撮像デバイスの更なる高性能化(高感度化、高素子化、高効率化等)に邁進するだけでなく、本技術に興味を持つ企業や省庁等と産官学の連携を取り、本研究成果の市場化に向け注力し、新産業創造による国力の向上に繋げていきたいと考えている。今の時代に様々な革命をもたらしてくれた偉大な先人達に感謝を示し、また、私の研究成果が次の時代の礎になることを夢見て、今後も研究に精進する。

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、多くのご指導・ご支援を賜りました主指導教官の河野行雄准教授、副指導教官の小田俊理教授に深く感謝致します。また、ナノカーボン材料の試料をご提供頂きました日本ゼオン株式会社様に深く感謝致します。

参考文献

- [1] B. Ferguson, and X. C. Zhang, *Materials for terahertz science and technology*, Nature Mater. 1, 26-33, (2002).
- [2] M. C. Kemp, P. F. Taday, B. E. Cole, J. A. Cluff, A. J. Fitzgerald, and W. R. Tribe, *Security applications of terahertz technology*, Proc. SPIE 5070, Terahertz for Military and Security Applications, 44, (2003).
- [3] M. Lee, and M. C. Wanke, *Searching for a solid-state terahertz technology*, Science 316, 64, (2007).
- [4] M. Tonouchi, *Cutting-edge terahertz technology*, Nature Photonics 1, 97, (2007).
- [5] M. Feiginov, H. Kanaya, S. Suzuki, and M. Asada, *Operation of resonant-tunneling diodes with strong back injection from the collector at frequencies up to 1.46THz*, Appl. Phys. Lett. 104, 24, 243509, (2014).
- [6] S. Kitagawa, S. Suzuki, and M. Asada, *650-GHz Resonant-Tunneling-Diode VCO with Wide Tuning Range Using Varactor Diode*, IEEE Electron Dev. Lett. 35, 12, 1215-1217, (2014).
- [7] D. Suzuki, S. Oda, and Y. Kawano, *GaAs/AlGaAs field-effect transistor for tunable terahertz detection and spectroscopy with built-in signal modulation*, Appl. Phys. Lett. 102, 122102, (2013).
- [8] Y. Kawano, *Terahertz waves: a tool for condensed matter, the life sciences and astronomy*, Contemporary Physics 54, 3, 143-165, (2013).
- [9] D. Suzuki, S. Oda, and Y. Kawano, *A flexible and wearable terahertz scanner*, Nat. Photon., Advance Online Publication (2016).
DOI: 10.1038/nphoton.2016.209
- [10] N. Oda, *Uncooled bolometer-type Terahertz focal plane array and camera for real-time imaging*, C. R. Phys. 11, 7-8, (2010).
- [11] R. Han, Y. Zhang, Y. Kim, D. Y. Kim, H. shichijo, E. Afshari, and K. K. O, *Active Terahertz Imaging Using Schottky Diodes in CMOS: Array and 860-GHz Pixel*, IEEE Journal of Solid-State Circuits, 48, 2296-2308, (2013).
- [12] M. E. Itkis, F. Borondics, A. Yu, and R. C. Haddon, *Bolometric infrared photoresponse of suspended single-walled carbon nanotube films*, Science 312, 413, (2006).
- [13] X. He, N. Fujimura, J. M. Lloyd, K. J. Erickson, A. A. Talin, Q. Zhang, W. Gao, Q. Jiang, Y. Kawano, R. H. Hauge, F. Leonard, and J. Kono, *Carbon Nanotube Terahertz Detector*, Nano Lett. 14, 7, 3953-3958, (2014).
- [14] E. Pickwell, and V. P. Wallace, *Biomedical applications of terahertz technology*, J. Phys. D: Appl. Phys., 39, 301-310, (2006).
- [15] S. R. Tripathi, E. Miyata, P. B. Ishai, and K. Kawase, *Morphology of human sweat ducts observed by optical coherence tomography and their frequency of resonance in the terahertz frequency region*, Scientific Reports, 5, 9071, (2015).
- [16] K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanage, and H. Inoue, *Non-destructive terahertz imaging of illicit drugs using spectral fingerprints*, Optics Express, 11, 2549-2554, (2003).