

ナノスケールポンププローブイメージング法で観る 半導体キャリアダイナミックス

吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実

筑波大学 数理物質系 (〒305-8573 茨城県つくば市天王台1-1-1)

Imaging of Transient Carrier Dynamics in Semiconductors by Nanoscale Pump-Probe Microscopy

Shoji YOSHIDA, Osamu TAKEUCHI, and Hidemi SHIGEKAWA

Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki 305-8573

(Received April 10, 2012)

We realized real space imaging of transient carrier dynamics by combining ultrashort pulse laser technology with scanning tunneling microscopy (STM). The new microscopy, called shaken-pulse-pair excited STM (SPPX-STM), simultaneously has the temporal resolution of ultrashort laser pulse width and the spatial resolution of STM. We successfully imaged carrier dynamics in semiconductors with nanoscale structures in real space by the new microscopy techniques.

Key Words: Scanning tunneling microscopy, Ultrashort pulse laser, Semiconductor physics, Pump-probe method, Nanoscale science and technology

1. はじめに

『より小さく、より速く』のかけ声の下、機能デバイスの開発が行われ飛躍的な進歩をとげてきた。しかし、対象のサイズが縮小するに連れ構造の不均一さがマクロな機能に与える影響は無視できなくなる。実際、今日の半導体デバイスでは要素のサイズが数十nmに達し、単一原子レベルの欠陥やドーパントの分布が全体の機能を定めるまでになっている^{1,2)}。かつては取り除く対象としてのみ検討されてきた欠陥が、その構造を制御することで新しい機能を創成する重要な素材の一つになりつつある^{3,4)}。こうした中、半導体中キャリアの量子ダイナミックスを局所構造と対応させナノスケールで解析することは、基礎的な観点から興味深いだけでなく、新しい機能デバイス開発の基盤として本質的に重要な課題となる。

量子光学の発展にともない、これまでに多くの光学的計測技術が開発されて来たが、その一つに超短パルスレーザーを用いるポンププローブ法がある。ポンププローブ法は、ポンプ光と呼ばれるパルス光で試料を励起した後、ある時間 t_d 遅らせて(遅延時間)照射するプローブ光の反射率や透過率を遅延時間を変えて測定することで、光誘起現象のダイナミックスをパルス光幅の時間分解能で解析することを可能にする計測法である(反射率測定の場合、Optical Pump-Probe Reflection(OPPR)法)⁵⁻⁹⁾。様々な分野で用いられ成果をあげてきたが、半導体の

キャリアダイナミックスについても多くの研究が行われ⁷⁾、試料を工夫することで単一量子ドットからの情報を引き出すことなども可能になっている^{8,9)}。光学的特性の理解は機能開発に不可欠な要素で有り、光を用いる事で材料やデバイスの光応答を直接解析できることも光学計測の利点の一つである。そこで、こうした手法を更に押し進め、不均一な構造による機能の特性を局所的な構造と対応させ、実空間、ナノスケールで可視化することが出来れば、マクロな解析の基礎を与えるだけでなく、新しい機能を生み出す基盤技術となることが期待される。

光学的手法を原子レベルの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡(STM)¹⁰⁾と組み合わせることで、こうした要求に応える技術を開発する試みが多く行われてきたが、両技術を融合した簡便な測定を実現するのは難しく、特に高速なダイナミックスの観察は困難とされてきた¹³⁻²⁴⁾。我々は、光励起や測定の仕組みに新しい方法を導入することでこれら課題と取り組んできた²⁵⁻⁴¹⁾。光変調トンネル分光法²⁵⁻²⁸⁾は、光をオンオフさせながらトンネル電流-印加電圧曲線(I - V 曲線)を測定し、表面起電力を解析する事で、局所的な電荷分布やポテンシャルの構造を簡便に可視化することを可能にする。同手法を用い、GaAs-pn接合に注入される少数キャリアのイメージング²⁶⁾や、内蔵電位の解析²⁷⁾、単一原子欠陥によるポテンシャル変調のナノスケール観察¹⁷⁾などの結果が得られている。更に、励起光として超短パルスレーザーを用い、

光学的なポンププローブ法の仕組みを組み合わせることで、こうした局所的なキャリアのダイナミクスをSTMの空間分解能で観察できる新しい顕微鏡が実現した²⁹⁻⁴¹⁾。

本稿では、超短パルス光幅の時間分解能とSTMの空間分解能を併せ持つ時間分解STMの原理と、同手法の半導体キャリアダイナミクス観察への応用について紹介する。

2. ナノスケールポンププローブ法

STMは原子レベルの空間分解能を持つが、時間的な分解能は回路的な制限により、たかだか数10 kHzである。そこで、如何にしてポンププローブ法の時間分解能をSTMに組み込むかがポイントになる。Fig. 1に(a)OPPR法と(b)時間分解STMの模式図を示す。まず、OPPR法では先に述べたようにポンプ光により試料を励起し、続いて遅延時間 t_d でプローブ光を同じ試料の領域に照射して、その反射率 R をフォトディテクターにより計測する。プローブ光の反射率はポンプ光による試料の励起状態(光キャリアの生成や電子状態の変化など、Fig. 1 (c)中の n)を反映することから(ここでは吸収飽和を考え、Fig. 1 (c)のプローブ光による励起を小さく描いてある)、反射率の変化 ΔR を遅延時間を変えて測定することで超高速の現象の解析が可能になる(Fig. 1 (d))。この時、フォトディテクターは連続的に照射されるプローブパルス列による反射光の平均強度を検出できればよく、フォトディテクター自身の時間分解能ではかなわない超高速の現象を追える。しかし、この

時の反射率変化 ΔR は0.1%以下と非常に微弱であることが多く、信号がレーザー強度揺らぎなどのノイズに埋もれてしまう。そこで、通常、Fig. 1 (a)に示すように光チョッパーを使用してポンプ光強度を変調し、ポンプ光のオン/オフによる反射率変化をロックインアンプによって計測する方法が用いられる。

一方、時間分解STMでは、OPPR法と同様にパルス光対をSTM探針直下の試料表面に照射し、パルス対の遅延時間を変化させて対応するトンネル電流の変化 ΔI を測定する(Fig. 1 (b))。このとき、OPPR法とは異なり、通常、ポンプ光とプローブ光(この場合も二つのパルス光をこう呼ぶことにする)の光強度は等しく設定する。光励起により誘起された状態が過渡的なトンネル電流 I^* に影響を及ぼすと(Fig. 1 (e)、パルスの大きさについては3.1節でメカニズムの詳細を説明)、プリアンプでならされた平均的なトンネル電流 I_0 も変化する。そこで、ポンプ光によって励起された状態が緩和する途中でプローブ光を照射し、遅延時間を変えてトンネル電流を測定することで、光誘起された状態が緩和する様子の情報がパルス光幅の時間分解能で得られることになる(Fig. 1 (f))。この時、プローブはトンネル電流であり、空間分解能はSTMの分解能に一致する。

OPPR法と同様、遅延時間に依存したトンネル電流成分は非常に微弱であるが、Fig. 1 (a)のようにして光チョッパーで光強度を変調すると、探針が熱膨張・熱伸縮を繰り返す。トンネル電流は探針-試料間距離に指数関数的に依存し、1 Åの変化に対して電流値は1桁変わるため、本来の微弱な信号成分は探針熱膨張による擬似的な信号によって覆い隠されてしまう¹³⁾。また、電場の変化による変位電流も非常に大きな影響を及ぼす。我々は光強度を一定に保ち遅延時間を変調することで、この問題を回避した(shaken-pulse-pair excited STM: SPPX-STM)。遅延時間を変調する方法として、可動ミラーステージを使用し光路長を変調するシェイカー法と呼ばれる方式(第1世代)²⁹⁾と高速パルスピッカーを用いる方式(第2世代)³⁷⁾がある。Fig. 2にそれぞれのシステムの模式図を示す。

第一世代の時間分解STMでは、Fig. 2 (a)に示すようにチタンサファイアレーザーより出力されたパルス光をビームスプリッターにより2つの光軸に分割する。片方の光軸ではステッピングモーターを使用して光路長 L を L_d 変化させることで遅延時間 t_d を作成し、他方の光軸でシェイカーステージを用い光路長を周波数 ω でサイン波的に微小振幅振動させ遅延時間の変調($t_d + (\Delta t_d) \sin \omega t$)を行う。その後、ミラーにより再び合成されたパルス光対をSTM探針直下の試料上に照射する。もしトンネル電流が遅延時間に依存する成分を持つと、遅延時間 t_d におけるトンネル電流は、 $\Delta I \sim (dI/dt_d) \Delta t_d$ のように変化する。測定では、遅延時間 t_d を変えて対応するトンネル電流の変化 ΔI を信号として記録する。得られた値は微分値に相当し、データを数値積分することで時間分解トンネル電流のスペクトルが求まる²⁹⁻³¹⁾。

このように、第一世代の時間分解STMでは、機械的

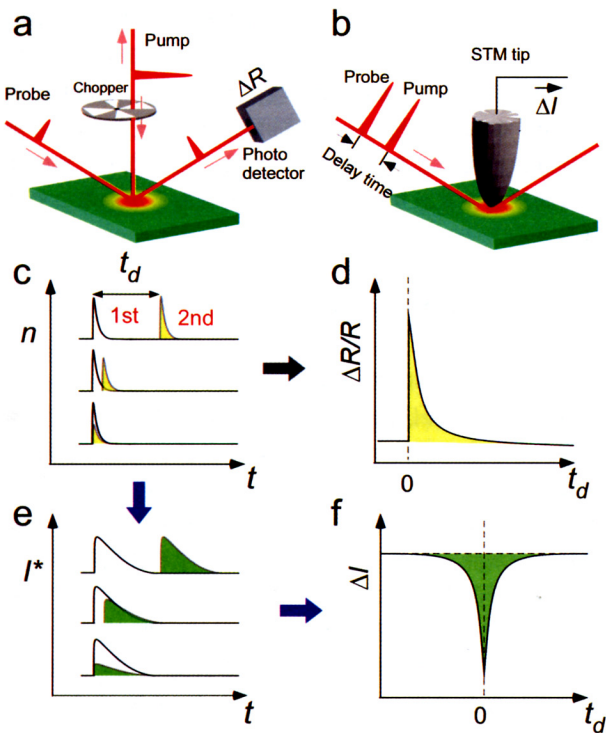


Fig. 1 Schematics of (a) OPPr and (b)time-resolved STM systems and their methods, OPPr: (c)→(d), time-resolved STM: (c)→(e)→(f).

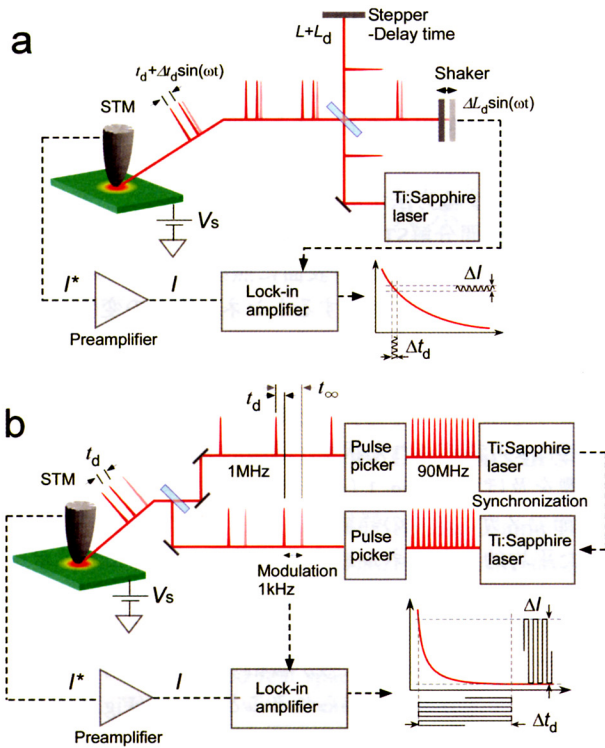


Fig. 2 Schematic illustrations of (a) first and (b) second generations of time-resolved STM.

に光路長を変えることで遅延時間の変調を行なう仕組みを用いたが、可動ミラーの距離と速さには制限があり変調振幅はps程度と小さく、変調周波数は20 Hz程度に限られる(STMとの組み合わせでは更に条件が厳しくなる)。そのためロックイン信号強度は非常に微弱で、また、トンネル電流やレーザー強度の低周波ノイズの影響を強く受けてしまう。従って、このシステムでは、測定は可能になったものの計測には長時間の積算が必要で、時間分解信号を空間的にイメージングすることは困難であった。

第二世代のシステムでは、パルスピッカーを用いた新しい遅延時間変調法を導入することでこうした問題が解決された³⁷⁾。パルスピッカーは偏光板と高速ポッケルセルにより構成され、入力されたパルス列から任意のパルス光を取り出せる。遅延時間は、今の場合、同期した2台のフェムト秒レーザー(本稿の実験で用いたのはパルス幅140 fs)から出力されるパルス光を取り出すタイミングを調整することで制御する。Fig. 2 (b)のように90パルス光のうち1パルス光のみを通過させる場合、繰り返し周波数はもとの90 MHzから1 MHzに減少し、最大の遅延時間 t_{max} はその周期の半分にあたる500 nsまで大きくできる。遅延時間の変調はこの t_{max} を基準にして、ある遅延時間 t_d との間で周期的に切り替えることで行う。この方式では、Fig. 2 (b)に示したように矩形波的に遅延時間を変調するため、ロックインアンプを用いて測定される信号は $\Delta I = I(t_d) - I(t_{max})$ に比例する。通常行われるようにサイン波で変調を行うと大きな振幅での変調は正しい信号の測定を妨げるが、矩形波を用いる場合 t_{max} を励起状態の緩和時間より十分に長く設定することが可能

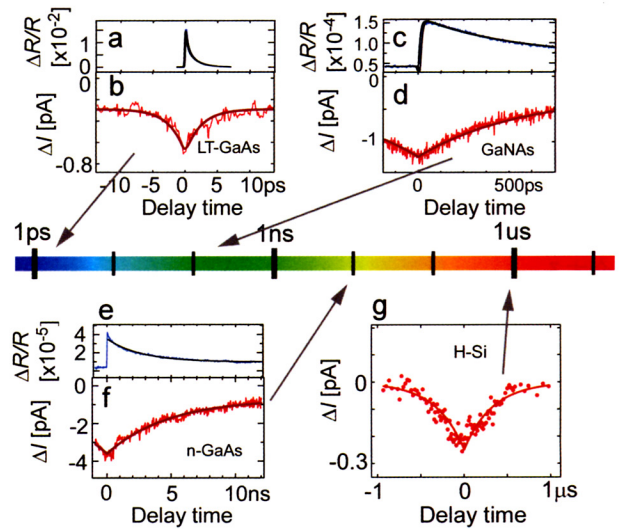


Fig. 3 Time-resolved signals from LT-GaAs, GaNAs, n-GaAs and H-terminated Si obtained by OPPR method and SPPX-STM.

で、信号は定常状態からの差分 $\Delta I = I(t_d) - I(t_{\infty})$ とみなすことができる。遅延時間の変調振幅を大きくすることで絶対値を検出することが可能となり、微分信号測定の場合に比べて信号強度が増大する。さらに遅延時間を1 kHzと高速に変調することでノイズレベルが大幅に低減される。これら改良により、信号のSN比は第一世代と比較しておよそ 10^2 倍(測定時間は $1/10^4$)に向上した。

こうして、幅広い時間領域に亘り、微弱なトンネル電流信号を精密に短時間で安定して測定できるようになったことで、時間分解信号をSTMの空間分解能でマッピングすることが可能な顕微鏡が実現した³⁷⁾。Fig. 3に、異なる寿命を持つ試料に対するOPPR法とSPPX-STMの測定結果を示す³⁹⁾。OPPR法で得られた緩和時間と同様の減衰持間がSPPX-STMで再現されている。OPPR法では、SPPX-STMで測定される局所的な結果を励起光の領域に亘り平均化した結果が得られることになる。Siの場合は間接遷移であり別途解釈が必要であるが、ここでは割愛する。

3. 半導体キャリアダイナミクスの観察

3.1 半導体のSPPX-STM信号

2章で述べた様に、ポンプ光とプローブ光により変調されたトンネル電流が遅延時間により変化すれば、平均的なトンネル電流の遅延時間依存性を測定することで、ポンプ光により励起された状態の緩和過程をパルス光幅の時間分解能で調べることができる。半導体内部での光励起は光学的なポンププローブの場合と同様に吸収飽和(ポンプ光により励起されたキャリア密度が高いとプローブ光による励起が阻害される現象)が基礎となるが、STMでは探針誘起バンド湾曲(Tip-induced-Band Bending (TIBB))と表面光起電力(Surface photovoltage: SPV)が測定メカニズムに参与する³⁶⁾。

Fig. 4は、半導体のSTM測定におけるバンド構造の模

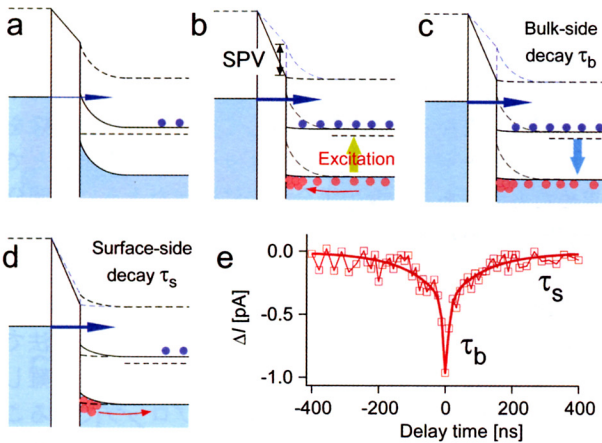


Fig. 4 Mechanism of SPPX-STM on semiconductors (a)-(d) and an example of SPPX-STM signal from GaAs sample (e). TIBB: tip-induced band bending, SPV: surface photovoltage, τ_b and τ_s : decay constants of photo-induced carrier densities obtained for the bulk-side and surface-side decays, respectively.

式図で、金属探針(Metal) - トンネルギャップ(Insulator) - 半導体試料(Semiconductor)によりナノスケールのMIS構造が形成される。探針と試料の間に逆バイアス(p型試料では試料が負、n型試料では試料が正、ここではp型を例として示す)を印加すると、電場のしめ込みによりFig. 4 (a)のように試料表面近傍のバンドが湾曲する(TIBB)。この状態で光を照射すると、光励起キャリアが半導体内の電場を打ち消すように分布しTIBBが緩和するが、これがSPVである(Fig. 4 (b))。TIBBが緩和するとトンネル障壁が低下するためトンネル電流は増加する。その後、励起状態は(1)再結合や拡散によるキャリア密度の減少(bulk-side decay: BSD, 減衰時間 τ_b , Fig. 4 (c)), (2)表面に捕獲されたキャリアの熱放出による減少(surface-side decay: SSD, 減衰時間 τ_s , Fig. 4 (d)), の二つの過程によって緩和し、バンドは光照射前の状態に戻る。こうして、一旦増加したトンネル電流はSPVの時間変化を反映して減衰し照射前の値になる。このトンネル電流の時間変化は非常に速くSTMのプリアンプで時間平均されてしまうため、通常の測定では直接捉えることはできない。しかし、これら過程の途中でプローブ光を照射すると、プローブ光によって生じるトンネル電流の変化が表面近傍のバンドの状態に対応して変わるため、平均化されたトンネル電流が遅延時間に依存して変化する。まず、プローブ光が(1)のBSDの過程で照射されると吸収飽和の機構でプローブ光により生じる光励起キャリアの量が減少し、光励起キャリア密度が遅延時間依存性を持ち、TIBBの緩和(SPVの大きさ)が影響を受ける。一方(2)のSSDの途中では、ポンプ光により生じたSPVによりバンドがフラットに近い状態にあるため、プローブ光の励起によって生じるバンドの変化がポンプ光による変化に比べて小さくなり、トンネル電流変化量も減少する。減少の度合いは t_d におけるSPVの緩和の大きさ、つまり遅延時間に依存する。その結果、得られたトンネル電流変化の遅延時間依存性(Fig. 4 (e))は、遅

延時間がゼロに近いほど減少し、その大きさは緩和時間より十分長い遅延時間 t_{\max} (= 500 ns)を基準として計測することで($\Delta I = I(t_d) - I(t_{\max})$)、試料のキャリア密度と対応させることができる。従って、遅延時間を変化させトンネル電流を測定することで、二つの緩和過程がトンネル電流の変化として観察されることになる(Fig. 4 (e))。光学的なポンププローブ法では(1)の吸収飽和の過程だけが検出されるが、SPPX-STMの場合、(2)の過程を通して表面に敏感な現象を解析することも可能になる。

以下に、本装置・手法で測定した結果を紹介する。

3.2 LT-GaAs/AlGaAs/GaAs構造のSPPX-STM³⁸⁾

まずバルク側の緩和BSDの例として、低温成長GaAs (LT-GaAs)/AlGaAs/GaAsの超構造の時間分解測定の結果を紹介する。半導体デバイスでは超構造によるキャリアの閉じ込めなどが機能発現に大きな役割を担うため、こうした構造の解析は非常に重要である。Fig. 5 (a), (b)は、両界面を含む領域で得られたSTM像とバンド構造の模式図である。GaAsとAlGaAsのバンドギャップはそれぞれ1.43 eV, 2.3 eVであり、励起光(800 nm)のエネルギー1.55 eVで励起されるのはGaAs中のみで、AlGaAsはLT-GaAsとGaAsの間の障壁として働く。

本手法の基本はSTMであることから、試料の好きな場所で時間分解測定を行えることが他に無い特徴である。Fig. 5 (c)は、AlGaAs/LT-GaAs界面を含む領域(図の最上段がSTM像)においてキャリアダイナミクスを観察した結果である。ここでは、探針を固定して遅延時間を変化させるかわりに、遅延時間を異なる時間に固定し探針を界面に垂直な方向に直線的に走査している(走査速度は10 nm/秒)。STMで分光を行う際、バイアス電圧を異なる値に設定して探針を走査し、バイアス電圧に対応する局所状態密度を求める方法と、探針を固定してバイアス電圧をスイープしバイアス電圧全体にわたる局所状態密度を得る二つの方法があるが、同様の測定手法と

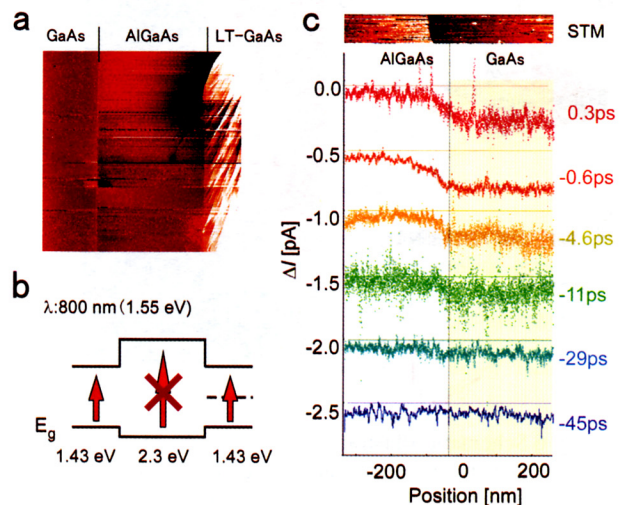


Fig. 5 (a) STM image and (b) band structure of GaAs/AlGaAs/LT-GaAs sample. (c) time-resolved STM signals obtained along a line crossing the AlGaAs/LT-GaAs interface.

いえる。前者では、異なる遅延時間に対する一連のキャリア密度の変化をそれぞれの場所でフィッティングすることで、個々の場所での時間分解信号を得ることができるが、この方法では、同時にSTM像を測定することでドリフトの影響を低減する利点がある。

Fig. 5 (c)に見られる ΔI の空間分布は、ポンプ光による励起から t_d 後のキャリア密度の空間分布に対応し、遅延時間とともにキャリア密度が減少していることがわかる。LT-GaAsでは欠陥の存在によりキャリアの再結合が促進されキャリア寿命が短くなると考えられるが、実際、GaAsのナノ秒程度の寿命に比べ、フェムト秒〜ピコ秒領域での減衰が観察されている。同様の測定を探针を2次元的に走査して行えば、時間分解信号を空間的にマッピング(イメージング)できることになる。

3.2 PIN構造のSPPX-STM³⁹⁾

続いて、内部構造がキャリアダイナミクスに与える影響を観察した結果を見てみよう。太陽電池などで用いられるPIN構造(p型とn型半導体で絶縁層Iを挟んだ構造、Fig. 6 (a)では、Fig. 6 (b)に示すようにI領域に内蔵電位が存在するため、キャリアダイナミクスが電場の影響を受ける。従って、もし再結合の速さに比べて電場によるドリフトが大きければその効果を直接検出することが可能になると期待される。

試料には、p型GaAsバッファ層(Beドーブ: $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 膜厚: 250 nm), p-型GaAs(Beドーブ: $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 膜厚: 500 nm), ノンドープGaAs(i-GaAs, 400 nm), n-型GaAs基板(Siドーブ $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, 膜厚: 1000 nm)をp-型GaAs(100)基板(Beドーブ: $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)上に蒸着して作製した構造を真空中で劈開して用いた。オーミックコンタクトを取るために試料の両面に金を蒸着してある。実験は短絡の条件で行い、誘起される内蔵電位はSPVの測定で確認した。

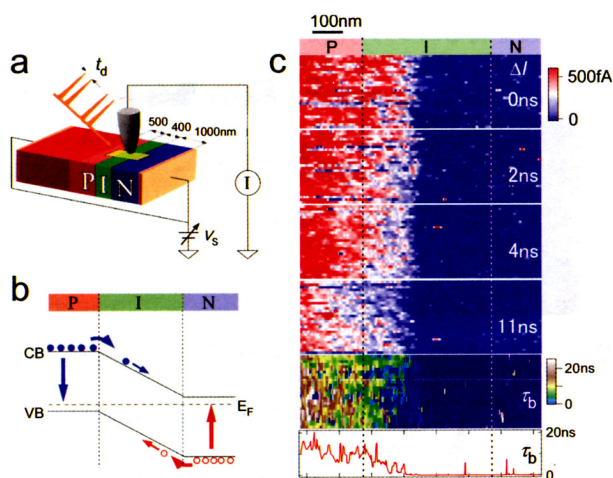


Fig. 6 Schematic illustrations of (a) GaAs-pin structure and its (b) inner potential, and (c) time-resolved signals obtained for different delay times. Bottom two are a two-dimensional mapping of decay constant obtained by fitting a series of time-resolved images and a cross-section along the white line in the mapping.

Fig. 6 (c)は、異なる遅延時間に対する2次元的なSPPX-STM信号の像と一連の t_d に対する2次元像から求めた時間分解像及びその断面図である。時間分解2次元イメージは、異なる遅延時間に対して得られた一連の像を用い各点でキャリアの減衰をフィッティングすることで求めたものである。今の場合、先に述べたように時間分解測定には逆バイアスの条件が必要で図の左半分が信号である。断面図から分かる様に、I領域ではキャリア密度の減衰が促進されており、電場の影響によるドリフトの効果が観察されている。光学的なポンププローブ法では、こうした局所的な電場の影響を測定することは難しいが、SPPX-STMではトンネル電流がプローブであることにより、局所的なキャリアダイナミクスを直接観察することが可能になっている。1章で述べた様に局所的なポテンシャルの影響を理解することは今後のデバイスの開発において基本となる重要な課題で有り、本手法のような測定法が大きな役割を担うものと期待される。

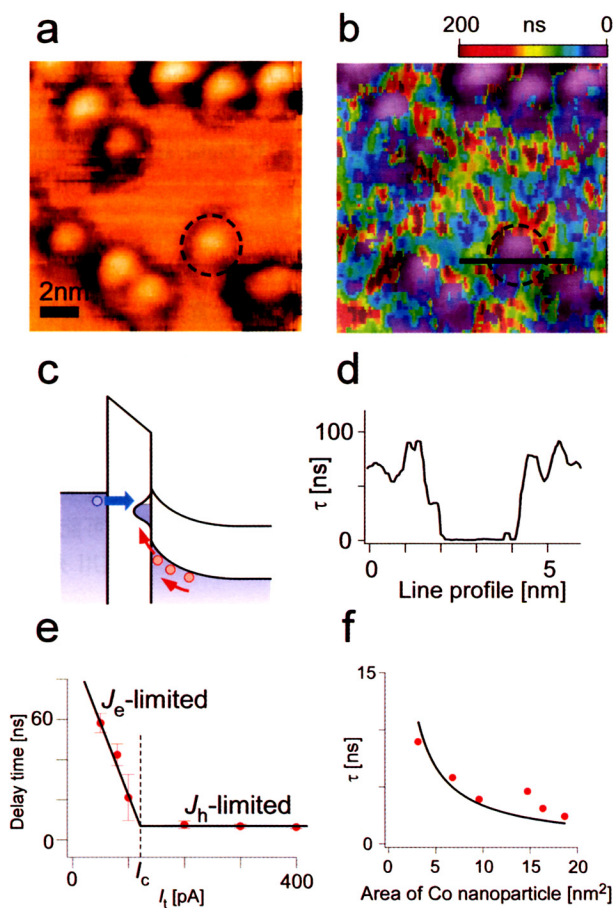
3.3 金属ナノ粒子/GaAsのSPPX-STM³⁷⁾

最後に表面での量子過程を調べることが可能なSSDの例として、金属ナノ粒子/半導体のギャップ内準位によるホール捕獲を解析した例を紹介する。Fig. 7 (a), (b)は、Coナノ粒子/GaAsのSTM像と同表面に対して得た時間分解信号の2次元像をSTM像に重ねたものである。時間分解2次元像は、先の例と同様、異なる遅延時間に対して2次元的な測定を行い、一連の結果を各点においてフィッティングし得られる時間分解信号をマッピングしたものである。半導体のギャップ内に準位が存在すると、表面に捕獲されたキャリア(今の場合ホール)は、ギャップ内準位においてSTM探针から注入される電子と再結合するため、寿命が短くなるとされている。実際、Coの領域で測定された寿命は裸のGaAsの領域で得られた寿命に比べて短い。また、電子の注入はSTM探针からのトンネル電流で有り(Fig. 7 (c)), 原子レベルの空間分解能を持つと期待されるが、Fig. 7 (d)の断面図で示されるよう、確かに、ナノ粒子の端で信号はサブnmの領域で鋭く変化している。

再結合にはトンネル電流とホール捕獲レートの二つの過程が律速となるが、トンネル電流を十分大きくすると、ホールの捕獲が主な律速過程となり(Fig. 7 (e)), 時間分解信号を測定することで捕獲レートを評価することが可能になる。Fig. 7 (f)は、こうして求めた時間分解信号をナノ粒子の大きさに対してプロットしたものである。ナノ粒子の大きさはギャップ内準位の密度に影響するため、寿命は粒子の大きさに依存して変化すると考えられるが、捕獲レートがナノ粒子の面積にはほぼ反比例する結果が得られている。ナノ粒子によるキャリアダイナミクスは、半導体デバイスだけでなく触媒反応の解析などにおいても重要な役割を担っている。

4. おわりに

超短パルスレーザーとSTMを組み合わせることで開



参考文献

Fig. 7 (a) STM image and (b) overlap of the STM image and two-dimensional decay constant map obtained for Co-nano particle/GaAs, (c) band structure, (d) cross section along the line in (b), (e) decay constant as a function of tunneling current showing two-limiting factors, (f) hole capture rate as a function of nano-particle size.

発された、フェムト秒の時間分解能と原子レベルの空間分解能を併せ持つ新しい顕微鏡 (SPPX-STM) と、同顕微鏡を用いた半導体キャリアダイナミクスの解析例を紹介した。SPPX-STMにより、局所的なキャリアダイナミクスをナノスケールの構造と対応させ実空間で解析する事が可能 (単一原子レベルでの構造の解析も可能) になった。SPPX-STMでは、キャリアダイナミクスへの内蔵ポテンシャルの影響や単一原子レベルでのダイナミクスなど、光学的なポンププローブ法では評価する事が難しい局所的な情報を得ることが可能である。また、光学的な方法では偏光を用いることによりスピンのダイナミクス計測も行われているが、本手法でも同様の解析をナノスケールで行うことができる。スピン偏極STMとの組み合わせも興味深い対象である⁴²⁾。本手法をより広い対象に適用することが可能となるよう、現在、こうした仕組みを含めた装置・手法の整備や、新しい材料、新しい現象の解析への応用など進めている。尚、本稿ではOPPR法とSTMの組み合わせに話を絞った。他の可能性については、文献(10, 36など)を参考にされたい。

- 1) A. Asenov, G. Slavcheva, A. R. Brown, J. H. Davies, and S. Saini: IEEE Trans. Electron Devices **48** (2001) 722.
- 2) M. Pierre, R. Wacquez, X. Jehl, M. Sanquer, M. Vinet, and O. Cueto: Nature Nanotech. **5** (2010) 133.
- 3) D. A. Drabold and S. Estreicher: *Theory of defects in semiconductors* (Springer, Berlin, 2006).
- 4) M. Berthe, S. Yoshida, Y. Ebine, K. Kanazawa, A. Okada, A. Taninaka, O. Takeuchi, N. Fukui, H. Shinohara, S. Suzuki, K. Sumitomo, Y. Kobayashi, B. Grandidier, D. Stievenard, and H. Shigekawa: Nano Lett. **7** (2007) 3623.
- 5) 平尾一之, 邱建榮 編: フェムト秒テクノロジー (化学同人, 東京, 2006).
- 6) A. M. Weiner: *Ultrafast Optics* (Wiley, Hoboken, 2009).
- 7) J. Shah: *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and Semiconductor Nanostructures* (Springer, Berlin, 1999) and references therein.
- 8) T. H. Stievater, X. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 133603.
- 9) Y. Masumoto: J. Luminescence. **100** (2002) 191.
- 10) 重川秀実, 吉村雅満, 河津璋 編: 走査プローブ顕微鏡 - 正しい実験とデータ解析のために必要なこと - (共立出版, 東京, 2009).
- 11) R. J. Hamers and K. Markert: Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 1051.
- 12) R. J. Hamers and D. Cahill: Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 2031.
- 13) S. Grafström: J. Appl. Phys. **91** (2002) 1717.
- 14) S. Weiss, D. F. Ogletree, D. Botkin, M. Salmeron, and D. S. Chemla: Appl. Phys. Lett. **63** (1993) 2567.
- 15) U. D. Keil, J. R. Jensen, and J. M. Hvam: Appl. Phys. Lett. **72** (1998) 1644.
- 16) D. Botkin, J. Glass, D. S. Chemla, D. F. Ogletree, M. Salmeron, and S. Weiss: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 1321.
- 17) R. H. M. Groeneveld and H. van Kempen: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 2294.
- 18) G. Nunes Jr. and M. R. Freeman: Science **262** (1993) 1029.
- 19) G. M. Steeves, A. Y. Elezzabi, and M. R. Freeman: Appl. Phys. Lett. **70** (1997) 1909.
- 20) N. N. Khusnatdinov, T. J. Nagle, and G. Nunes Jr.: Appl. Phys. Lett. **77** (2000) 4434.
- 21) R. J. Hamers and D. G. Cahill: Appl. Phys. Lett. **57** (1990) 2031.
- 22) S. Grafström, P. Schuller, J. Kowalski, and R. Nuemann: J. Appl. Phys. **83** (1998) 3435.
- 23) V. Gerstner, A. Knoll, W. Pfeiffer, A. Thon, and G. Gerber: J. Appl. Phys. **88** (2000) 4851.
- 24) J. Jersch, F. Demming, I. Fedotov, and K. Dickmann: Appl. Phys. A **68** (1999) 637.
- 25) O. Takeuchi, S. Yoshida, and H. Shigekawa: Appl. Phys. Lett. **84** (2004) 3645.
- 26) S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 026802.
- 27) S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: Jpn. J. Appl. Phys. **47** (2008) 6117.
- 28) S. Yoshida, Y. Kanitani, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: Appl. Phys. Lett. **92** (2008) 102105.
- 29) O. Takeuchi, R. Morita, M. Yamashita, and H. Shigekawa: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 4994.
- 30) O. Takeuchi, M. Aoyama, R. Oshima, Y. Okada, H. Oigawa, N. Sano, H. Shigekawa, R. Morita, and M. Yamashita: Appl. Phys. Lett. **85** (2004) 3268.
- 31) O. Takeuchi, M. Aoyama, and H. Shigekawa: Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 5354.
- 32) O. Takeuchi, M. Aoyama, H. Kondo, A. Taninaka, Y. Terada, and H. Shigekawa: Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) 1926.
- 33) Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, A. Taninaka, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: Nanotechnology **18** (2007) 044028.
- 34) H. Shigekawa, S. Yoshida, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada, H. Kondo, and H. Oigawa: Thin. Solid. Films. **516** (2008) 2348.
- 35) H. Shigekawa, O. Takeuchi, and M. Aoyama: Sci. Technol. Adv. Mater. **6** (2005) 582.
- 36) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: J. Phys. Condens. Matter. **22** (2010) 264008.
- 37) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: Nature

- Photonics **4** (2010) 869.
- 38) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: *Adv. Opt. Technol.* **2011** (2011) 510186.
- 39) S. Yoshida, Y. Terada, R. Oshima, O. Takeuchi, and H. Shigekawa: *Nanoscale* **4** (2012) 757.
- 40) H. Shigekawa, O. Takeuchi, Y. Terada, and S. Yoshida: *STM Based Techniques Combined with Optics* (Series: Handbook of Nanophysics, Vol.6, Taylor & Francis, Oxford, 2010).
- 41) H. Shigekawa, S. Yoshida, M. Yoshimura, and Y. Mera: In *Laser-combined STM and related techniques for the analysis of nanoparticles/clusters* ed. A. Hashim (Nanoparticle/Book 1, INTECH, Rijeka, 2012).
- 42) S. Loth, M. Etzkorn, C. P. Lutz, D. M. Eigler, and A. J. Heinrich: *Science* **329** (2010) 1628.

レーザーワード

時間分解STM(time-resolved STM)

STMは原子レベルの空間分解能を持つ顕微鏡であるが、通常、プリアンプの帯域により時間的な分解能はミリ秒、サブミリ秒に制限される。そこで、STMの発明以来、より高速な現象の観察が可能となるよう時間分解能の改善に多くの努力が払われてきた。回路的な工夫では限界があることから、検出系の帯域に依存しない高速な測定法の開発が検討され、超短パルスレーザーによるポンププローブ法を融合することで、パルス光幅であるフェムト秒の時間分解能を持つSTMが実現した。外部

変調によるSTM探針の熱膨張や変位電流により微弱な信号が隠されてしまう問題の解決が大きな課題となるが、励起光の強度変調ではなく遅延時間を変調しロックイン検出することで、微弱なトンネル信号の精密な計測が可能になった。遅延時間は、鏡を機械的に駆動する光路差の制御では無く、ポッケルスセルを用いた電氣的なパルス操作により幅広い時間領域に亘る測定が可能になる。

(重川 秀実)