

フェムト秒時間分解走査プローブ顕微鏡技術の開拓と極限計測 — 極微世界の高速現象をプローブ顕微鏡で探る —

1. 研究の目的・意義

ナノスケール科学技術の進展には、新しい機能を生み出す構造作製と、作製されたデバイスの局所・高速ダイナミクスを正しく評価する分析技術が必要不可欠です。原子レベルの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡 (STM) と高速パルスレーザーを組み合わせて、走査トンネル顕微鏡の空間分解能と高速パルスレーザーの時間分解能を持つ計測手法を開発します。手法を用いれば、例えば、(1) 半導体中のキャリア (電子や

ホール) が再結合、拡散、ドリフトする様子を動作状態で可視化したり、(2) 相転移や格子振動など材料特性の空間的・時間的揺らぎの観察、(3) 原子レベルの欠陥や微細構造による局所ダイナミクスの変化をナノスケールで調べること等、これまでの手法ではとらえることが困難な領域で新しいスタイルの計測を行うことが可能になります。



重川 秀実

筑波大学大学院数理物質科学研究科 教授

2. 装置概要図と説明

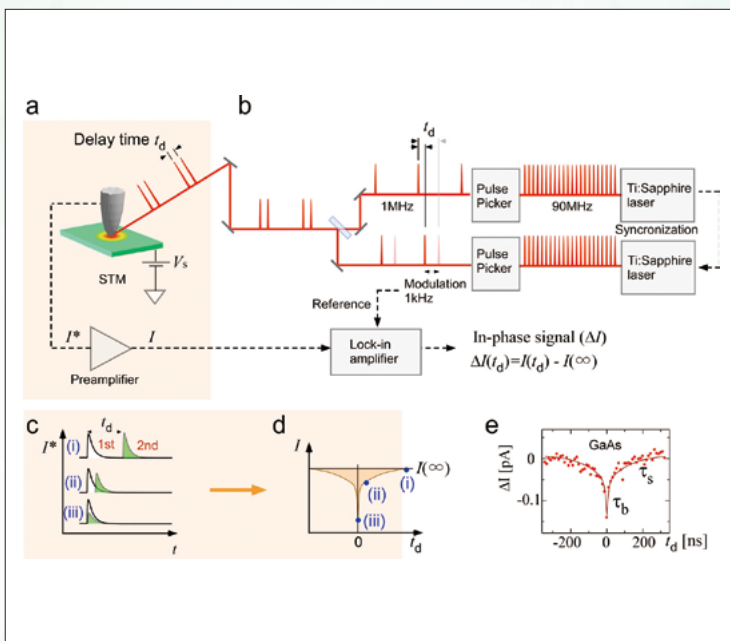


図1 新しいシステムと原理の模式図

光学的なポンププローブ法とSTMを組み合わせることで、空間分解能 1nm 以下、時間分解能ピコ秒以下のシステムの実現

- (1) 光学的ポンププローブ法と同様に、超短パルス光を二つの経路に分け、両者に遅延時間を持たせて再び同じ光軸に載せることで、ある遅延時間を持つパルス対列を作製します。
- (2) パルス対列でSTM探針直下を励起し、遅延時間を変化させてトンネル電流を測定します。
- (3) 一つ目のパルスにより励起された状態が緩和する過程で二つ目のパルス光が試料に届くと、二つ目のパルスにより誘起されるトンネル電流は、遅延時間に依存した影響を受けて全トンネル電流に変化が現れ信号となります。
- (4) この際、熱膨張の影響を取り除き、幅広い遅延時間領域 (様々な寿命) に渡り、微弱トンネル電流を精密に安定して計測する為の仕組みを組み込みます (パルスピッキング法: 要素技術に詳細)。
- (5) 試料の各点で時間分解信号を計測する方法と、遅延時間を一定にして走査を行い、異なる遅延時間に対して得られた二次元・時間分解信号を用いて解析する二つの方法がありますが、目的に応じて使い分けることで、効率的な分析が可能になります。

3. この分野で目指す課題と目標

幅広い寿命 (サブピコ秒~マイクロ秒領域) を持つ複合材料からなるナノスケールの構造を対象として、

- (1) キャリアのダイナミクスなどを実空間で解析・イメージング。
- (2) 熱膨張の影響などを除去し、微弱トンネル電流信号の安定した精密計測。
- (3) 時間分解能は試料を励起する超短パルスレーザーの光学パルス幅。
- (4) 空間分解能はトンネル電流を用いることでSTMの分解能。

を実現することが可能な、新しい顕微鏡システムの構築を目指します。

4. 開発装置の世界的位置づけ(ベンチマーク)

世の中に無い全く新しい顕微鏡の実現

原理的には励起光の超短パルスレーザー・パルス幅の時間分解能とSTMの空間分解能を持ち、超高速ダイナミクスを実空間でマッピング可能。

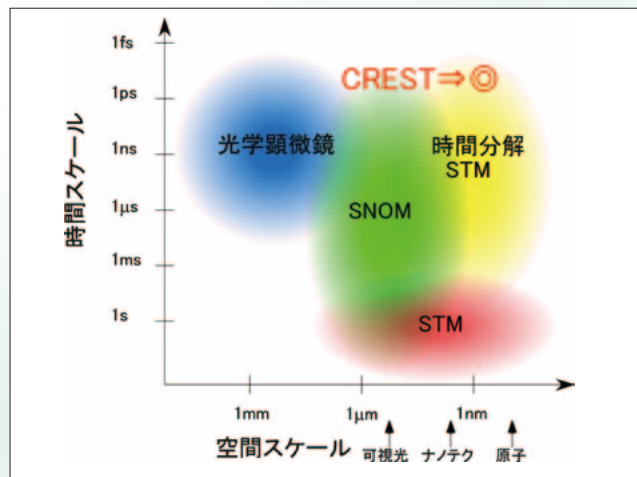


図2 時間・空間分解能の図

5. 得られた研究成果

新しいタイプの顕微鏡で、いずれも世界で初めて達成された成果です

- 分解能：1. 時間分解能：励起光（超短パルスレーザー：現在140fs）のパルス幅
2. 空間分解能：STM (<1nm)
- 2ps ~ 1μsの範囲にわたり、トンネル電流を用いた時間分解計測を実現
- 時間分解信号の実空間イメージングを可能にSTMの原子像と対応させながらナノスケールのポテンシャル構造の中で光誘起キャリアの局所ダイナミクスを解析できます

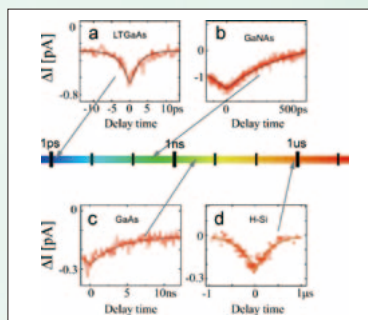


図3 異なるキャリアの再結合寿命を持つ材料を試料とした、SPPX-STM信号。幅広い時間領域にわたる測定が可能です。

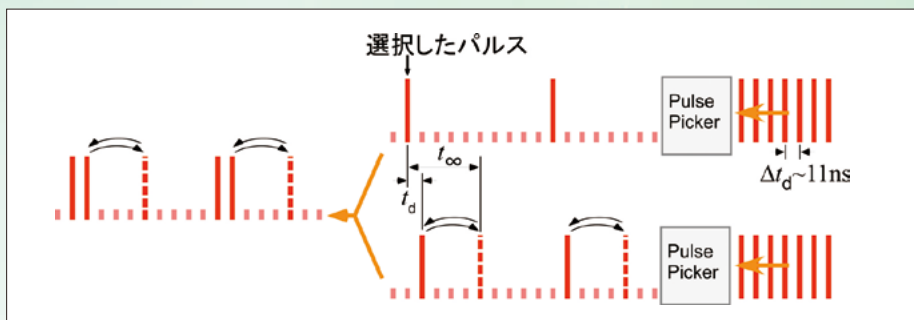


図4 パルスピックアップ法の模式図。励起光のパルス列から特定周期のパルス列を選択して抜き出し（ポッケルスセルで選択的に透過させ）用いることで、ミラーによる光路差の変調とは異なり、高速に大きな遅延時間の変調（図中、矢印で表示）を行うことが可能になります。

6. 装置および要素技術の説明

分解能：時空両領域で極限の分解能を持つシステムの構築

1. 時間分解能：励起光（超短パルスレーザー：現在140fs）のパルス幅 SPPX-STM信号のフィッティングにより、時間分解能がパルス幅で実現されていることを確認
2. 空間分解能：STM (<1nm)
Co/GaAs試料を対象として、空間分解能を確認（アプリケーションの項目参照）

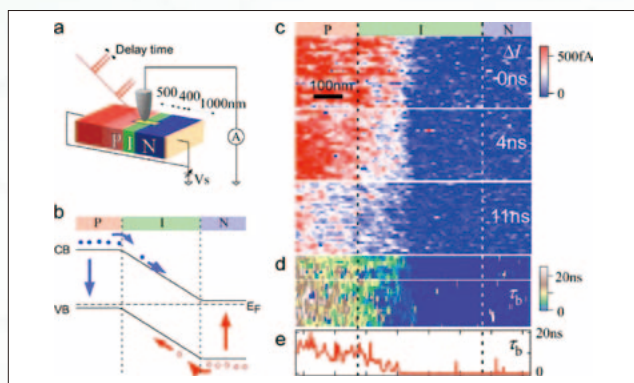


図5 GaAs-PIN構造中でのキャリアダイナミクスの可視化
遅延時間一定で二次元的な信号を取り込み、異なる遅延時間のデータをあわせて、フィッティングにより時間分解信号を得ます。

遅延時間変調法

パルスピックアップ法：ポッケルスセルを用い遅延時間を矩形的に変調することで

- (1) 幅広い時間領域を対象とした実験が可能に。
- (2) S/N比の改善により測定時間が短縮され、時間分解信号を空間マッピングすることが可能に（アプリケーションの項目参照）

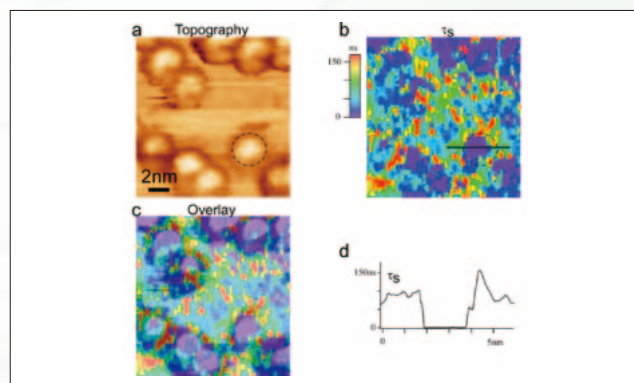


図6 Coナノ粒子/GaAs構造のSPPX-STM測定結果
時間分解信号とあわせてSTM像（Topography）も同時に取り込みます。

7. アプリケーション

- 半導体デバイス構造を試料とし、電子・ホールの再結合、拡散・内部電界によるドリフトなどをナノスケールで計測し、実空間でイメージングすることが可能になりました。図5は、GaAs-PIN構造の試料の測定例です。
- ナノ粒子は重要な研究対象ですが、図6は、GaAs表面の直径2nm程度のCo粒子を対象とした測定例です。Co/GaAs界面準位によりCo上ではキャリア寿命が短くなっていますが、寿命像の断面から<1nmの分解能を持つことが分かります。

論文および特許リスト

- 【論文リスト】 ポンププローブ測定装置及びそれを用いた走査プローブ顕微鏡装置 重川秀実、武内修 国際公開番号：2006-322662号（出願日 2006.11.29）
Probing nanoscale carrier dynamics in semiconductors using laser combined STM.
H. Shigekawa, S. Yoshida, Y. Terada, O. Takeuchi and H. Oigawa Solid State Physics (Kotaitsumuri), 42, 501, 795-804 (2007)
Nanoscale Dynamics Probed by Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy
H. Shigekawa, S. Yoshida, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada, H. Kondo and H. Oigawa Thin Solid Films, 516, 9 2348-2357 (2008)
Ultrafast photoinduced carrier dynamics in GaNAs probed using femtosecond time-resolved scanning tunnelling microscopy
Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, A. Tanihara, O. Takeuchi and H. Shigekawa Nanotechnology 18,044026 (2007)

連絡先

代表者名：重川 秀実 所属・役職：筑波大学大学院数理物質科学研究科 教授
TEL：029-853-5276 E-mail：hidemi@ims.tsukuba.ac.jp URL：http://dora.bk.tsukuba.ac.jp