

「物質現象の解明と応用に資する新しい計測・分析基盤技術」  
平成16年度採択研究代表者

重川 秀実

筑波大学大学院数理物質科学研究科・教授

## 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

### 1. 研究実施の概要

本プロジェクトは、走査プローブ顕微鏡法の優れた空間分解能と超短パルス光・ポンププローブ法のエネルギー及び時間領域での高い選択性・分解能を融合することにより、時空両領域での極限的な計測・制御・物性実験が可能な装置・手法を開発し、ナノスケール領域での新たな科学技術の展開をはかることを目的とするものである。

2つの手法は異なる領域で極限化されたものであるため、両者を融合するには個々の技術を単独で用いる際には隠されていた問題点が顕わになり、多くの試みにもかかわらずこれまで実現することはかなわなかった。我々は、「ポンププローブに用いる2つの超短パルス光の間の遅延時間を制御する新しい仕組み」を導入することでシステムの S/N 比を大幅に改善し、両先端技術を融合して微弱な時間分解トンネル信号の計測及びその空間マッピングが可能な新しい顕微鏡法を開発した。

前年度までに、半導体を試料とする場合、バルク側では光学的なポンププローブ法と同様の飽和吸収によるキャリア緩和の過程、また、表面近傍では欠陥準位などを通じた再結合過程の両者を観察できる手法であることが確認された。

本年度は、実際、PIN 構造のナノスケールポテンシャル中で、ドリフトや拡散により、キャリア寿命が見かけ状変調を受ける様子や、Co/GaAs 界面準位による再結合速度の変化、GaInNAs 構造中での原子構造の揺らぎと対応する励起キャリア寿命の変調などの測定を行い、それぞれを可視化することに成功した。また、相転移の解析を行う準備として、In/Si 系の金属-絶縁体相転移を対象として光誘起現象の解析を行った。結果として、キャリアの注入により相転移を光制御可能であることが明らかになった。同分野では初めての結果で、光スイッチなど新しい可能性が開かれた。

### 2. 研究実施内容

#### ・研究のねらい

原子レベルの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡法 (STM) とフェムト秒の時間分解能を

持つ超短パルス光を組み合わせることにより、時間と空間の両領域において極限的な分解能を有する新しい顕微鏡を開発してきた。昨年度までで、得られる情報の検討が進み、空間マッピングなども行えることが確認された。本年度は、これら結果をもとに、より多様な応用が可能となるよう、新しい系を対象として実験を遂行し検討することを目的とした。

#### ・研究実施方法

半導体の試料を対象とした場合、本手法では、内部でのキャリアのダイナミクスと表面での再結合過程を反映した現象を解析できることが明らかになった。そこで、より深い理解を得、新しい手法を一般化することを課題とし、異なる現象を含む系を試料として探索し実験を進める。

#### ・当初の研究計画(全体研究計画書)に対する現在の研究進捗状況

ほぼ、当初の計画に沿って進めてきた。本年度は、金属・半導体、太陽電池材料、有機材料などを対象として新しい手法を適用し、キャリアダイナミクスのナノスケールでのマッピングを可能とした。また、相転移現象への適用を目的とし、低次元伝導体を試料として用いた実験で、光励起によるキャリア注入で金属絶縁体転移を制御可能であることが明らかになった。以下に詳細を述べる。

図1は光STMを用いて得られる信号の例である。半導体を試料の場合、図のように信号には二つの成分が現れる。半導体を試料としてSTMの測定を行う場合、暗状態では、STM探針(金属)-トンネルギャップ(絶縁体)-半導体試料によるMIS構造を形成している。探針・試料間に印加された電界が染み込むことにより表面ではバンドが湾曲しており(探針誘起バンドベンディング:TIBB)、湾曲の度合いは局所的なキャリアの密度に依存する。光照射を行うと励起されたキャリアの再分布によりTIBBは減少する。これが表面フォトルテージ(SPV)で、光量が十分であればバンドはフラットになる。光照射後、内部の励起キャリア密度は再結合、拡散などにより減少し、その後、表面近傍に捕獲されたキャリアが放出されてバンドは元の湾曲した状態に緩和していく。緩和の途中、光学的なポンププローブ光と同様に二つ目のパルス光を入射し、パルス間の遅延時間を変化させて対応するトンネル電流の変化を計測すると、内部でのキャリアの再結合、拡散などのダイナミクスは、光学的な場合と同様、吸収飽和(最初のパルスで励起されたキャリアが残っていると、二つ目のパルスにより励起されるキャリアの量が制限を受ける)により、二つのパルスにより励起されるトータルキャリア密度に反映される。トータルキャリア密度はTIBBの減少の大きさを定め、トンネル障壁の変化を通じてトンネル電流の変化を与えます。従って、遅延時間を変化させて対応するトンネル電流の変化を見れば、内部でのダイナミクスの様子が観察されることになる。一方、表面に捕獲されたキャリアが放出される途中で二つ目のパルスが照射されると、バンド構造の緩和の時間が変化し、トータルのトンネル電流の大きさの変化を通して表面近傍でのキャリアのダイナミクスを観察することが可能になる。これら二つの過程が、図に示す二つの緩和時間に対応する。

こうして開発された手法により、これまで光学的な方法でしか測定できなかったピコ秒、サブピコ秒領域の現象を、STMを用い、ナノスケールで計測することが可能になる。更に、光STMの場合、上記表面領域での緩和過程を計測する手法を用いると、表面での原子スケールの欠

陥によるキャリア再結合の様子などを観察することも可能になる。

昨年度から本年度はじめにかけて、GaAs-pn 構造の内部ポテンシャルや、表面のステップによる欠陥準位を経由する再結合の様子をナノスケールで可視化することに成功した。その後、これら結果をもとに、Co/Si 界面準位によるキャリア再結合、GaInNAs 構造中の N 原子分布など原子構造の揺らぎに対応したキャリア寿命の変調、有機薄膜(バナジル・ナフタロシアン)などを対象として測定を行い、いずれも期待通りの結果を得ることに成功した。

また、In/Si 系の金属絶縁体相転移を対象とした光誘起現象の解析では、光励起によりキャリア注入が起こり、金属絶縁体転移が光により制御可能であることが明らかになった。通常、金属絶縁体転移は温度により制御されるが、光による制御は高速であり、バイアス電圧と組み合わせることにより、ナノスケールのスイッチ素子となる可能性があるものと期待される。

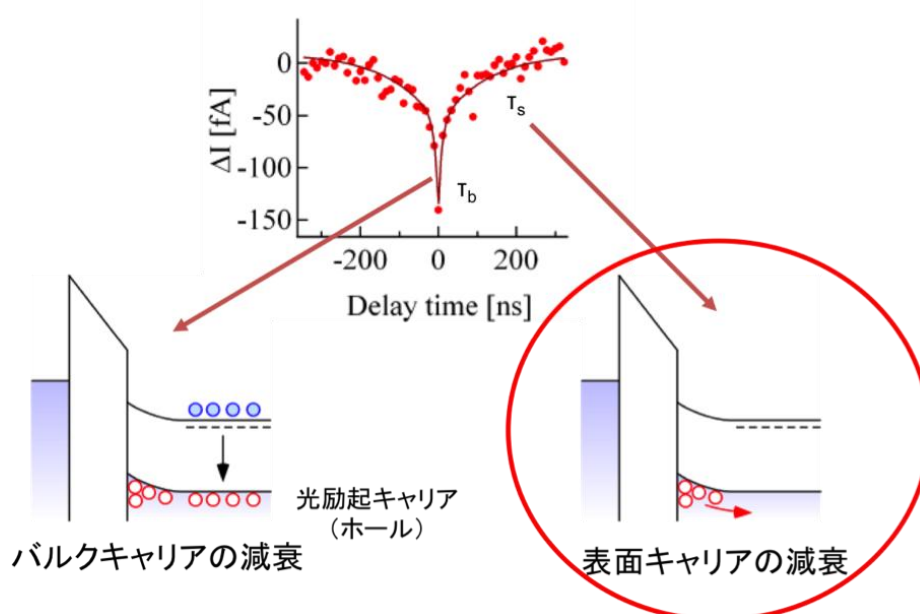


図1 光 STM による半導体試料中キャリアダイナミクス測定例。二つの成分とそれぞれに対応する機構の模式図

### 3. 研究実施体制

#### (1)「重川」グループ

① 研究分担グループ長: 重川 秀実(筑波大学、教授)

② 研究項目

超高速プローブ計測技術の開発

### 4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表 (原著論文)

1. Optical doping: active control of metal-insulator transition in nanowire  
Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Atsushi Okubo, Ken Kanazawa, Maojie Xu, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa  
Nano Lett. Vol. 8, No. 11, 3577-3581(2008)
2. Growth of GaNAs films with As<sub>2</sub> source in atomic hydrogen-assisted molecular beam epitaxy  
Ayami Takata, Ryuji Oshima, Hidemi Shigekawa, Yoshitaka Okada  
Journal of Crystal Growth, 310,16, 3710-3713 (2008)
3. Nanoscale mapping of built-in potential in GaAs p-n junction using Light-Modulated STM  
S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
Jpn. J. Appl. Phys., 47, 7, 6117-6120 (2008)
4. Scanning tunneling microscopy and spectroscopy studies of glycine on Cu (100) - Inelastic-tunneling manipulation of single glycine molecule -  
K. Kanazawa, S. Yoshida, A. Taninaka, K. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
Jpn. J. Appl. Phys., 47, 7, 6153-6155 (2008)
5. Self-organization of In nanostructures on Si surfaces  
Maojie Xu, Arifumi Okada, Shoji Yoshida and Hidemi Shigekawa  
Appl. Phys. Lett. 94, 073109 (2009)

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数：0 件（CREST 研究期間累積件数：2 件）