

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 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
2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名（研究機関名・職名は研究参加期間終了時点）  
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）  
主たる共同研究者  
長村 俊彦（(株)ユニソク開発研究所 部長）（～平成19年3月）

### 3. 研究実施内容

#### チーム全体概要

走査プローブ顕微鏡が有する空間領域での優れた分解能と超短パルス光の有する時間領域での優れた分解能を融合することにより、時空間領域での極限的な計測技術を開発し、新たな科学技術の展開に貢献することが本プロジェクトの目的である。走査トンネル顕微鏡(STM)の発明直後から、高速光パルスと組み合わせることで、極限的な空間・時間分解能を有する装置を実現しようとする試みはあったが、単純に二つの技術を組み合わせただけでは、光照射による熱膨張によるトンネル電流変化が主成分として計測されてしまう問題があった。極限的な空間・時間分解能を有する装置を実現するためには、この問題を解決することが不可欠であり、そのために研究代表者らが考案したのが遅延時間変調法である。遅延時間変調法ではパルス光の強度を変化させる代わりに、連続した二つのパルス光の遅延時間を変調させる。例えば、パルス光によるトンネル電流の大きさが、その前に照射したパルス光によるトンネル電流の残留成分の影響を受ける場合、二つのパルス光を照射した時に得られる全体でのトンネル電流の大きさは、遅延時間の関数として変化し、この変化はトンネル電流の時間応答に対応したものとなる。一方で、連続するパルス光の合計強度は一定に保たれるため、熱膨張の影響は遅延時間によらず一定であり、熱膨張によるトンネル電流の変化は大幅に低減される。従って、遅延時間変調法が走査プローブ顕微鏡で確立されれば極限的な空間・時間分解能を有する顕微鏡を実現するという研究者の長年の夢がかなえられる。本プロジェクトでは制御性良く、高いS/N比でこの遅延時間変調法を実現できる装置を組み上げ、高速時間応答の二次元マッピングがナノメートルスケールで可能であることを実験的に示すことに成功した。原理的にはフェムト秒からマイクロ秒の広範囲に及ぶ遅延時間でナノスケールの局所領域の測定が可能な新しいナノプローブ顕微鏡を世界に先駆け確立した。

具体的にはプロジェクト期間を通して下記の2点に集中して研究を推進した。

- ① 走査プローブ顕微鏡と超短パルス光を組み合わせた顕微鏡ではレーザーの揺らぎや遅延時間の変調による光照射位置のずれが大きな問題となる。この影響を低減し、光照射位置が常にSTM探針位置と一致するように、光軸をモニターし調整する仕組みを導入した。さらに、光軸のずれが少ない遅延時間変調法の開発に努めた。また、S/N比を改善するための工夫を測定系に行った。
- ② 半導体で観測されるトンネル電流はパルス光によるキャリアの蓄積を反映する。遅延時間変調により蓄積したキャリアの寿命が測定できることから、いろいろな半導体試料でキャリア寿命の一次元ならびに二次元マッピングを試み、新しく開発した装置の性能を実証することに努めた。

#### メインチームの主な成果

(筑波大学 重川グループ)

##### 1) 光スポットトラッキング

2つのダイオードで光軸の位置と角度を監視し、2つの鏡の角度をフィードバック制御することで、数マイクロラジアン程度の高精度で光軸を安定化させ、正確にSTM探針の位置にパルス光を当てるシステムを構築した。

##### 2) 新しい遅延時間変調方法

これまでのミラーを稼働させる遅延時間変調に対して、パルスピッカーを用い、パルス光列から選択的にパルスを透過することでデジタル的に遅延時間を変調する手法を提案し、実証した。この結果、パルス幅により決まる短時間(本プロジェクトで使用しているレーザーは130フェムト秒)からマイクロ秒を越えた長い時間まで、幅広い遅延時間制御が可能になった。デジタル制御なので光スポット位置の揺らぎが小さくなる上に、大きな遅延時間の変調、高速変調が可能になったことで従来法に比して100倍のS/N比の改善を達成した。これにより、半導体でのキャリア寿命をはじめ、幅広い試料を対象とした計測が可能となった。

- 3) 幅広い遅延時間測定の実証  
通常のSi、GaAsに加えて非常にキャリア寿命の短い低温成長GaAsを用いることで、マイクロ秒からピコ秒の広い範囲のキャリア寿命に対応した信号が得られることを確認した。
- 4) pn接合を流れるキャリアの可視化  
時間分解測定ではないが、pn接合に印可したバイアスによる小数キャリアの流れをナノスケールで可視化した。
- 5) 時空間分解計測の実現
  - 5.1 GaAs/AlGaAs/LT-GaAs超構造の界面付近でキャリア寿命を測定することで、ピコ秒以下の時間分解能でキャリア寿命のナノスケール二次元マッピングが可能であることを示した。
  - 5.2 GaAs表面の単原子ステップを含む領域でキャリア寿命を二次元マッピングし、STMによるトポグラフィ像と合わせることで、原子ステップによるキャリア捕獲に対応したキャリア寿命の変化を観測した。
  - 5.3 Co/GaAs構造を用いて、Co粒子によるGaAs中のキャリア寿命の変化を二次元マッピングし、1ナノメートル以下の空間分解能でキャリア寿命の測定ができることを確認した。
- 6) 完全に解明したとは言えないが、遅延時間の変調によりトンネル電流に信号が出現するメカニズムを検討した。

## サブチームの成果

(ユニソク 長村グループ)

### 1) マルチ計測光励起プローブシステムの開発

空間・時間分解STMの開発には直接関係しなかったが、将来の複数箇所同時測定を視野に入れて、独立駆動可能な4本の走査プローブと、それらプローブを試料上の目的箇所に配置するための走査電子顕微鏡(SEM)とを組み合わせた、マルチ計測プローブシステムを開発した。

## 4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)得られた成果を以下にまとめる。

- ①原著論文発表(国内誌0件、国際誌23件)、  
その他の著作物・総説、書籍など10件
- ②学会招待講演(国内会議26件、国際会議15件)
- ③学会口頭発表(国内会議23件、国際会議12件)ポスター発表(国内会議40件、国際会議62件)
- ④国内特許出願(2件)、海外特許出願(1件)
- ⑤受賞3件、新聞報道1件

関連する研究について多くの学術論文があり、国際的にレベルの高いジャーナルに発表されている。国際会議発表も活発である。2010年春のアメリカ物理学会で招待講演を要請されていることは、この研究が外国からも高く評価されていることを示している。メインテーマの発表についてはインパクトファクターの高い論文を目指して、外部発表を控えたこともあり、今後に期待したい。知的財産としてはパルスピッカーによるデジタル変調方式が海外特許も含め出願されている。これはSTMとの組み合わせ以外にも時間分解測定一般に応用可能な汎用技術であり、極めて高く評価できる。

### 4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

STMの空間分解能と光の高速性を組み合わせることは、多くの研究者が期待していた技術であり、精緻な技術開発に基づいてそれを実現してみせた功績は大きい。得られた装置は国内外の類似装置と比べて高いレベルにあり、フェムト秒からマイクロ秒の広い時間範囲でキャリア寿命などを二次元測定できる顕微鏡が実現された。本プロジェクトの成功に触発されて、今後類似の研究が出てくるものと予想される。現時点では試料に律速されて装置性能が十分に発揮しきれていない可能性があり、新しい材料に応用することで原子分解能を有するフェムト秒時間分解測定として花開いて欲しい。パルスピッカーによるデジタル変調方式はSTM装置以外にも応用できる汎用技術として実用化される公算も十分に認められる。

本プロジェクトで実現された装置は、今後二つの方向で科学技術に貢献することが期待できる。一つは、超高速走査プローブ装置が完成したことで、光による高速スイッチングなどを原子オーダーで観測できる可能性である。新しい材料系に応用することで大きなインパクトにつながる可能性がある。もう一つは、超高速ではないが、ピコ秒からマイクロ秒の広い時間範囲で精密な空間分布測定が実現された点である。この領域に時間応答が存在する様々な半導体の分析に新たな計測技術を提供する可能性があるほか、原子分子レベルの、電子的な緩

和現象を直視できる装置として、様々な研究分野やデバイス開発などに活かすことができる。

今後、多探針を用いるマルチ計測光プローブシステム、多数パルスを用いる高感度化などの方向にも研究が展開されていくであろう。

#### 4-3. 総合的評価

パルス遅延時間変調法と走査プローブ顕微鏡を組み合わせ、ナノメートルスケールの空間分解能、フェムト秒からマイクロ秒の広い範囲の時間分解能を有する装置を実現し、半導体試料を用いて装置性能を実証した。得られた成果は、装置開発として高い独自性を持ち、かつ走査プローブ顕微鏡の新しい分野を切り開くものとして非常に高く評価できる。日本発の新しい計測技術の確立を目指す本 CREST の戦略目標達成に向けた貢献度も非常に高い。遅延時間をパルスピッカーにより制御する新方式への追加投資が本研究の成功の鍵となっており、追加予算が非常に効果的に働いた典型例でもある。