

半導体表面物性評価のための超高速分光技術

表面物性計測グループ 石岡 邦江

1. 背景・目的

最近の物質科学やナノテクノロジーの発展にともない新たな光電子材料が注目を集めている。これらの材料を実際にデバイスとして活用するためには電子格子の超高速光応答を明らかにすることが不可欠である。本研究では半導体やそのナノ構造の超高速ダイナミクスを実験的に検証することを目的として、フェムト秒パルスレーザーを光源とした高精度ポンプ・プローブ測定装置の開発を行った。

2. 研究成果

固体結晶に超短パルス光を照射すると位相の揃った原子集団運動（コヒーレントフォノン）を誘起することができる。これまで光パルス対やパルス列を用いて原子振動を制御する「コヒーレント振動制御」の試みが多数行われてきたが、その多くは1次元の振動モードを対象としたものであった。2次元の原子運動を光制御できれば光誘起相転移などを利用して固体材料の機能性をさらに高めることができる」と期待される。本研究では位相固定されたパルス対を用いて、 A_{1g} と E_g の二つの異なる対称性のフォノンモードを持つビスマスの原子運動の二次元制御を行った[1]。パルス対の間隔 τ および

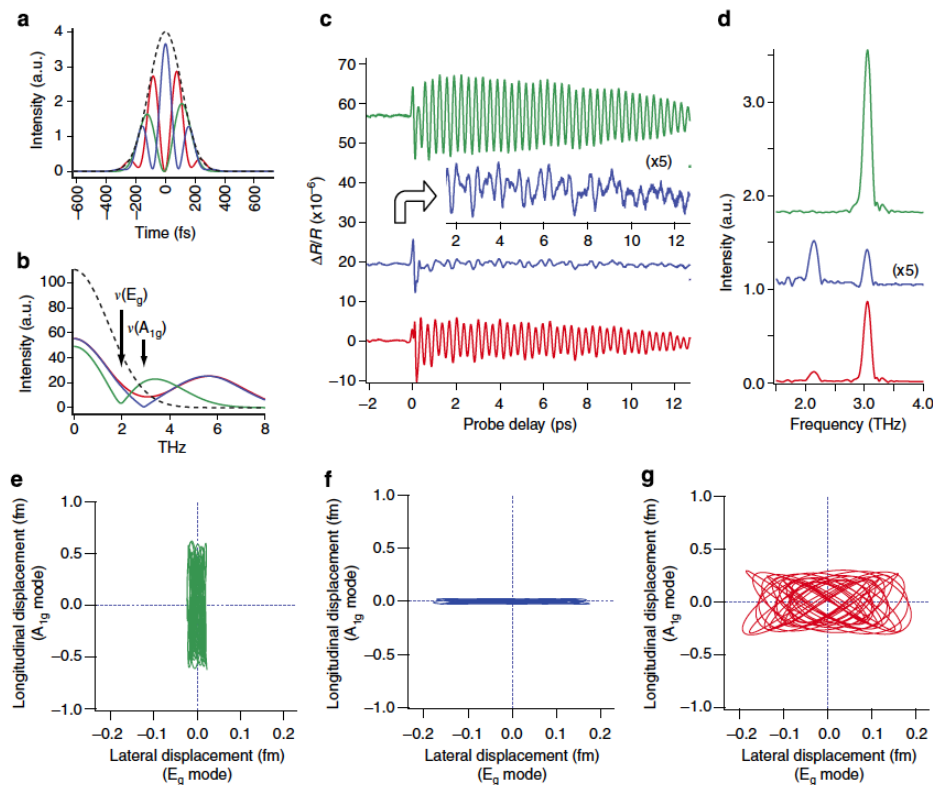


図1 励起光パルス対の間隔 τ を変えた場合の光パルス対の時間包絡線(a)およびそのフーリエ変換(FT)スペクトル (b)、およびこれを用いて励起したビスマスの過渡反射率信号(c)とそのFTスペクトル(d)。

緑： $\tau=49.4$ fs, 青： $\tau=92.2$ fs, 赤： $\tau=93.6$ fs, いずれもチャープ $\phi''=2600$ fs²。

(e-g) 反射率振動から再現された原子運動の軌跡[1]。

チャープ ϕ を変えることにより、パルス対の包絡線を制御できる (図 1a)。図 1c に異なる間隔 τ のパルス対によって誘起されたコヒーレントフォノンによる反射率変化を示す。 $\tau=49.4$ fs (緑) の場合には光パルス対のスペクトル (図 1b) は 2 THz で極小となっているが、このとき振動数 2 THz の E_g モードは抑制される (図 1d)。逆に $\tau=92.2$ fs (青) の場合には光パルス対のスペクトルが 3 THz で極小となり、それに対応して 3THz の A_{1g} モードが抑制される。反射率変化から実空間での運動を再現する (図 1e-g) と、 $\tau=49.4$ fs (図 1e) の場合は A_{1g} (縦) 方向の運動のみ、 $\tau=92.2$ fs (図 1f) の場合には E_g (横) 方向の運動のみが選択的に励起されていることが分かる。

ビスマスの単体結晶は半金属であるが、その表面はバルクとは異なる特有の電子状態を示すことが知られ、最近ではBi極薄膜がトポロジカル絶縁体としての性質を示すと予言されている。しかしながら実験的にBi極薄膜を作製するのは難しく、Si(111)-7x7上に成長させた場合、膜厚3 bilayer(BL)を境にバルクの菱面体晶構造から薄膜特有の黒燐構造に相変化する。われわれは相変化近傍での構造を調べるためにファストスキャン法を用いた高感度過渡反射測定を行い、24 BLから3 BLの極薄膜までは菱面体晶構造を示す A_{1g} と E_g フォノンを検出した (図2) が、2.5 BLでは振動信号は検出されなかった[2]。膜厚の減少にとともに E_g フォノンは徐々に高波数側にシフトするが、 A_{1g} フォノンは4 BLまでほとんどシフトを見せず、3 BLで突如低波数側にシフトして2つに分裂する。この結果は、菱面体晶構造でも相変化近傍では表面の影響で原子間結合が不安定化していることを示している。

3. 展望

ここで紹介した成果は、フェムトメートル(fm)以下の極微小原子変位や、数原子層の極薄膜の構造を検出したものであり、本装置のすぐれた感度が遺憾なく発揮された例となっている。今後、半導体ナノ構造や低次元物質極薄膜の物性研究に応用が期待される。

参考文献

- 1) H. Katsuki, J. C. Delagnes, K. Hosaka, K. Ishioka, H. Chiba, E. S. Zijlstra, M. E. Garcia, H. Takahashi, K. Watanabe, M. Kitajima, Y. Matsumoto, K. G. Nakamura and K. Ohmori, Nat Commun. 4, 2801 (2013).
- 2) K. Ishioka, M. Kitajima, O.V. Misochko, T. Nagao, Phys. Rev. B 91, 125431 (2015).

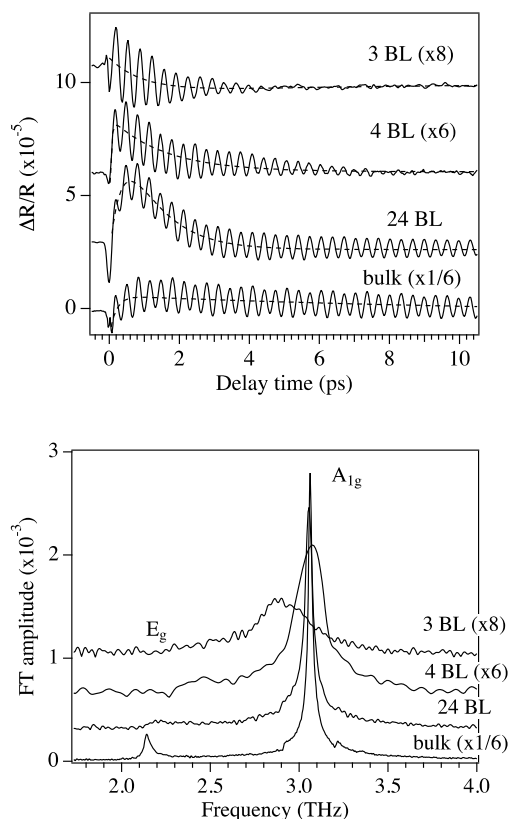


図2 Si(111)-7x7 基板上に異なる膜厚で成長させたBi 薄膜の反射率変化 (上) と振動成分のフーリエ変換スペクトル (下) [2]。