

フェムト秒レーザーを利用した時間分解光電子顕微鏡の開発とその応用

福本恵紀

東京工業大学 大学院理工学研究科, JST-CREST

ナノメートルの空間分解能とフェムト秒の時間分解能で物性の変化を測定した例は少なく [1, 2], 測定できる試料・物性も限られている. そこで, 我々は, 様々なデバイスの性能を決定する電荷キャリアの運動を3次元(空間2次元+時間)でプローブできるフェムト秒パルスレーザーによるポンプ-プローブ法を利用した時間分解光電子顕微鏡(TR Laser-PEEM)を立ち上げた. さらに, 金属-絶縁体相転移, 及び, スピンダイナミクスなどの超高速現象も測定できる多機能装置を目指している. 本装置の特徴は, 光源に周波数可変(1 kHz~500 kHz)の Yb:KGW レーザー(中心波長: 1028 nm~1.2 eV)を使用しており, パルスあたりの光子密度を低くし, 高繰り返し周波数にすることで, 光電子放出に伴う試料の帯電を回避しながら十分なシグナルを得ることができることである. 本報告では, 太陽電池・メモリなどに使用されている半導体の表面に励起した光キャリアのダイナミクスを紹介する.

図 1(a)-(c)は, Si 表面に第 2 次高調波(2.4 eV)を照射して生成した光キャリアを第 4 次高調波(4.8 eV)で検出した時間分解 PEEM 像であり, 中心付近の強度の変化がキャリア消滅(再結合)速度を表す(図 1(d)実線). 図 1(d)の破線は, ポンプ光とプローブ光による 2 光子光電子放出量の変化であり, その半値幅(230 fs)が本測定装置の時間分解能になる. さらに, 半導体表面に蒸着した金属の膜に電圧を印加することで, Si 及び GaAs 中の光キャリア移動のダイナミクスをイメージングに成功している.

図 2(a)は, Si 基板上に堆積した Si ナノ結晶($\phi=10$ nm)の SEM 像であり, 同試料の連続光(4.8 eV)とパルスレーザー(2.4 eV)による PEEM 像を図 2(b)と(c)に示す. (b)では暗いコントラストを示す結晶粒が, (c)では結晶サイズに依存する光学ギャップを利用した 2 光子吸収により明るいコントラストで観測されている(図中矢印). それぞれのナノ結晶中の光キャリアの寿命測定を行った.

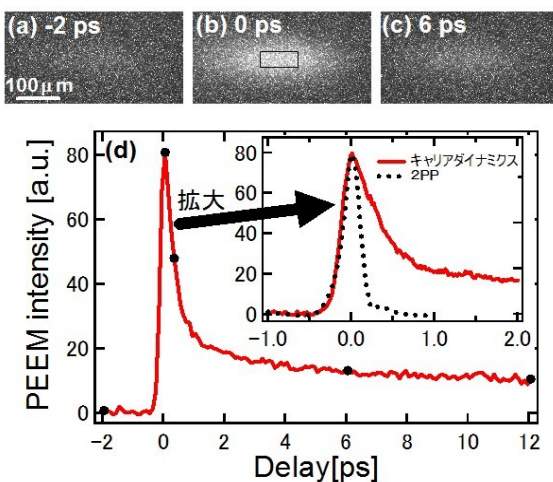


図 1 : TR Laser-PEEM による Si 表面のキャリアダイナミクス

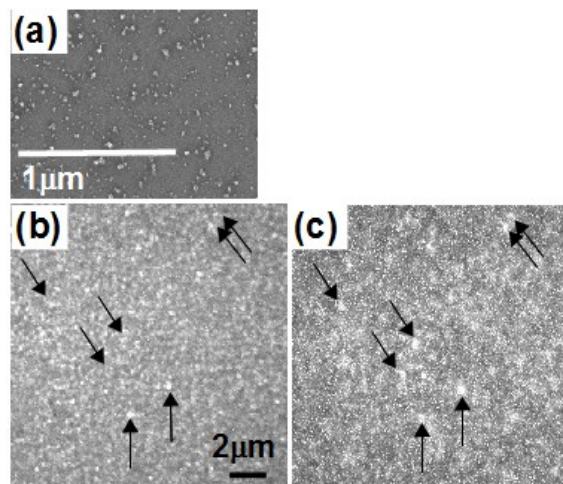


図 2 : (a) Si ナノ結晶の SEM 像
(b) PEEM 像, Cw 光, (c) PEEM 像, パルス光

[1] Zewail, A. H. *et al.* JACS **2011**, 133, 7708.

[2] Aeschlimann, M. *et al.* PNAS **2010**, 107, 5329.