

フェムト秒パルス光励起STM

筑波大学物理工学系 武内修、木村知彦、道祖尾恭之、重川秀実

Femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy

Osamu Takeuchi, Tomohiko Kimura, Yasuyuki Saino, and Hidemi Shigekawa

Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, <http://dora.ims.tsukuba.ac.jp/>

我々が考案・構築したフェムト秒時間分解 STM の概要を図 1 に示す。特徴的なのは、光強度に変調を加えるのではなく、2パルス間の時間間隔 t_d に変調を加え、これに同期したトンネル電流変化を抽出するところである。他の方法では、強度を変調することで2パルス照射時の電流 $I_{\text{tun}}(t_d)$ と励起光未照射時の電流 I_{dark} との差 $I_{\text{diff}}(t_d) = I_{\text{tun}}(t_d) - I_{\text{dark}}$ を求め、この t_d 依存性を得ることが提案されている。しかし、 I_{diff} には探針の熱膨張やトンネルギャップのキャパシタンスによる擬似信号が大きなバックグラウンドとして観測されてしまい、光強度の揺らぎによるバックグラウンドの変化の中から t_d に依存する微弱な成分を取り出すことは難しい。今回我々が考案した方法では、 t_d に微小な振動を与え ($t_d = t_d^{(0)} + \Delta t_d \sin \omega t$)、電流の変化をロックインアンプで検出する。得られる信号は、

$$I_{\text{tun}}(t_d^{(0)} + \Delta t_d \sin \omega t) = I_{\text{tun}}(t_d^{(0)}) + \Delta t_d \left. \frac{dI_{\text{tun}}}{dt} \right|_{t_d=t_d^{(0)}} \sin \omega t + O^{(2)}(\Delta t_d)$$

と展開した際の $\sin \omega t$ の係数部分であり、 I_{tun} の $t_d = t_d^{(0)}$ での微係数となる。この方法では、バックグラウンド成分は原理的に現れず、高精度の測定が約束される。さらに、光照射による熱膨張で探針と試料とが衝突する可能性も無いため、これまでよりも強い励起光を用いることも可能である。

実際に光照射下で安定してトンネル電流測定が出来ることを示したのが図 2 である。Au(111)に波長 800nm、繰り返し周波数 80MHz、平均パワー 0.3mW の光をチョッパーにより強度変調して照射すると、変調に同期してトンネル電流が変化する。Au はこの波長の光をほとんど吸収しないため、これは探針の熱膨張による擬似的な信号と考えられる。さらに高光強度では探針の伸びがトンネルギャップを越え試料と衝突してしまう。これに対しパルス間隔を変調 ($t_d^{(0)} \sim 5\text{ps}$, $\Delta t_d = 400\text{fs}$) する場合、光未照射時と同様に安定して電流測定を行うことが出来た。図 3 ではシステムの時間分解能を評価した。GaAs(100)試料 (n-type, $1 \times 10^{15}\text{cm}^{-3}$) に正の試料バイアスを掛けると、探針と試料の間にショットキー障壁が形成されるため、光照射時のみ電流が流れることになる。ここに、2つのパルスをほぼ同時に ($t_d^{(0)} \sim 0$) 入射すると、パルス同士の干渉が生じ、 t_d の変化に応じて実効的な光強度が光電場の周期 (2.68fs) で振動する。この振動は t_d の絶対値が大きくなるに従い徐々に小さくなり、2つのパルスが時間的に重ならなくなる (パルス幅 $\sim 25\text{fs}$) と消える。図 3 上はこの時のトンネル電流で、光強度に伴う電流の変化が見られ、我々のシステムで t_d の制御が数 fs の精度で行える、つまり時間分解能がパルス幅のみ (モノサイクル光であれば $\sim 5\text{fs}$) により制限されることが分かる。図 3 下は、 t_d に 0.5fs の微小変調を与え、対応するトンネル電流の変動をロックイン検出 (時定数 30ms) したものである。期待通り、上のグラフの微分波形が得られ、時間間隔変調による時間分解 STM 測定が正常に動作することが確かめられた。(実際の実験においては $t_d^{(0)}$ 、 Δt_d はパルス幅よりも十分大きな値とし、ここで見た干渉の効果に影響されないよう、留意する必要がある。) さらに当日はこの装置を半導体ナノ構造中の光キャリアの減衰過程や、光機能分子の励起・緩和過程などに応用する際の、測定原理、感度、ノイズレベルについて考察を行う。

図 1

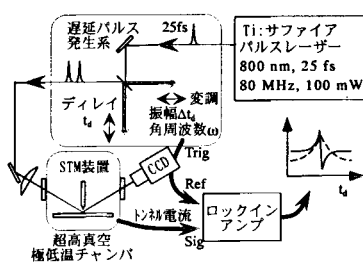


図 2

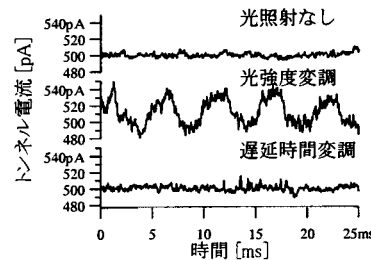


図 3

