

近接場光学顕微鏡による半導体微細・量子構造の分光評価

齋木 敏治*・大津 元一**

半導体量子構造や新材料の光学的評価をおこなう目的のために、高い空間分解能をもつ顕微分光技術の必要性が急速に高まりつつある。従来のレンズ光学系による手法はその利便さも手伝い、現在広く普及しているが、その分解能力に関しては必ずしも満足のいくものとはいえない。ごく最近、「光の波長に制限されない分解能」を謳い文句に登場した近接場光学顕微鏡はこの要求に応える道具立てとして、その活躍が大いに期待されている。近接場分光はその原理的な問題点として、高分解能の代償である感度の低さが指摘されているものの、レーザーや検出器など周辺技術の充実に後押しされ、数々のグループにより果敢な取り組みがなされている。

これまでの応用例をざっと振り返ってみると、近接場分光の用途は大きく以下の2つに分類される。1つは、試料表面におけるドーパント、欠陥などの分布、あるいはキャリアのダイナミクスを探る空間分解分光である¹⁻⁴⁾。この中には光・電子デバイスの基本型であるp-n接合の評価⁵⁻⁹⁾やレーザーダイオードなどのデバイス自体の診断⁹⁻¹¹⁾も含まれる。もう1つは、量子井戸のアイランド、量子細線・ドットなどサイズ不均一性をともなう粒子群から1つを選び出し、その本質的な特性を抽出する個別粒子分光である¹²⁻¹⁶⁾。前者の場合、概して高い分解能を必要とすることが多く、原子間力顕微鏡動作を併用して、表面形状との精密な対応づけがおこなわれることが特徴である。一方、後者に関しては、粒子

密度の許す限り、分解能に対する厳しい要求は緩められる。むしろ、観察対象のサイズが小さいこと、詳細な物性観測に立ち入る場合に弱励起測定が必要となることなどから、十分な検出感度を確保することが重要となる。

近接場分光においては、上で述べたように対象に応じて、トレードオフの関係にある分解能と感度のいずれを優先させるかが決定される。実際にこの兼ね合いはプローブ先端の金属開口径の制御により、自由に調整が可能である。このような融通性は、近接場光学顕微鏡を走査型プローブ顕微鏡ファミリーの中においてみたとき、他にはみられない特長といえる。本稿ではまず、従来の顕微分光技術と比較して近接場手法がもつ優れた特性について述べる。続いて空間分解分光、個別粒子分光の応用例としてp-n接合の多角的評価、単一量子ドットの低温における発光観察をそれぞれ紹介する。

1. 近接場分光の基本技術

1.1 原理と測定方法

近接場分光をおこなう際、使用するプローブ形状、光の照射、検出方法は観察試料に応じてさまざまである。ここでは対象を以下のように限定する。(1) プローブとしては微小開口型を用いる、(2) 試料は不透明基板上に成長させた半導体試料である(基板が透明の場合、測定上の困難は緩和される。具体的には、単一色素分子観測の成功例にならばよい)、(3) 測定は、最も頻繁におこなわれるフォトルミネセンス検出を想定する。図1(a)に測定原理を示す。先鋭化した光ファイバーの先端部分に遮光のための金属膜をほどこし、光の波長よりも小さな開口を作製する。ファイバー中に導入され、微小開口を通過した直後の光(近接場光)は、2種類の

* (財)神奈川科学技術アカデミー (〒213 川崎市高津区坂戸 3-2-1)

** 東京工業大学総合理工学研究科 (〒226 横浜市緑区長津田町 4259)

E-mail: saiki@net.ksp.or.jp

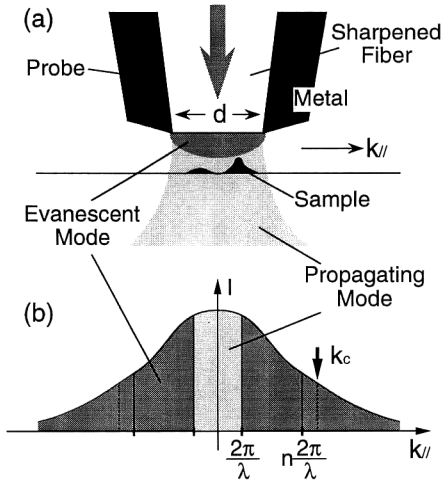


図1 (a) 近接場光学顕微鏡の原理, (b) 微小開口における回折波強度のスペクトル。

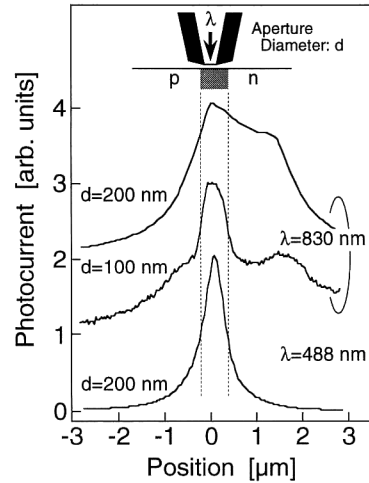


図2 近接場光電流信号の開口径, および励起波長に対する依存性。

成分から構成されている。1つは伝搬光成分であり、開口直下では開口径程度のサイズに絞り込まれている。もう1つはエバネセント（非伝搬）成分であり、開口近傍に染み出ている。これらの成分は、開口面内の波数 ($k_{||}$) による回折波強度スペクトル上では図1(b)のように分布する（ここでスペクトルのひろがり（カットオフ k_c ）は、開口径 d によって決定され、 $k_c \sim \pi/d$ がおおまかな目安であることが実験的に見積もられている^{6,8)}）。つまり、 $k_{||} < 2\pi/\lambda$ の成分は空気中への伝搬が許され、それ以外はエバネセント成分としてふるまう。このような近接場光によって試料を照射することにより、局所的な励起が可能となる。信号としてのフォトルミネセンス検出は、不透明基板試料を用いているため、プローブと同じ側の外部集光、あるいは再び微小開口を通じた集光によっておこなわれることになる。以下では、半導体顕微鏡観察においてしばしば見られる問題点に関して、近接場技術を用いることによりそれがどのように克服可能であるかを詳述する。

1.2 エバネセント成分の発生

観察対象となるドーパントや粒子が表面近傍にのみ分布する表面試料とそれらが深さ方向にも一様に分布するバルク試料では、異なる光の照射方法が必要である。バルク試料の場合、高分解能を達成するためには、横方向だけでなく、深さ方向に対しても局所的な励起が重要となる。通常のレンズ系を含め、伝搬光を用いる限りそれは不可能であり（あとで述べるように吸収が強い場合は例外）、エバネセント成分を用いることが本質的な意味

をもつ。ただし、概して半導体試料は大きな屈折率 ($n = 3 \sim 4$) をもつため、試料中においても有意なエバネセント成分を発生させるには、開口径に厳しい条件が課せられる。この事情は以下のように説明される。図1において、実際に開口が屈折率 n の試料に対して近接場領域に近づいたとき、大気中とは異なり、 $k_{||} < n(2\pi/\lambda)$ の成分が試料中への伝搬を許される。そのため、試料内部に存在しうるエバネセント成分は残りわずかとなってしまふ。この相対的な寄与を増すためには、回折波スペクトルのひろがりを大きくする必要があり、試料の屈折率に応じて、小さな開口を準備しなければならない。

バルク試料において、エバネセント成分の果たす役割を実験的に確認した結果を簡単に紹介する。手法としては p-n 接合における光電流検出を通して、試料内部での光のふるまいを探る方法を用いる^{5,6,8)}。p-n 界面（活性領域）近傍でプローブを走査することにより得られた光電流信号変化のようすを図2に示す。 $\lambda = 830 \text{ nm}$ のとき、開口径によって分解能が大きく異なっていることがわかる。開口径 $d = 100 \text{ nm}$ の場合、試料中においてもエバネセント成分が発生しているため、活性領域の真上にプローブがきたときに特に強い信号が検出され、高い分解能が達成されている。それに対し、 $d = 200 \text{ nm}$ のときには伝搬光成分の寄与が大半を占める。そのためプローブが真上からはずれたときでも、試料内部に光が進み、活性領域まで到達してしまい、分解能は大幅に低下する。この場合、分解能は結晶中への光の侵入距離で決定される。逆に、励起光として吸収の強い波長域のもの

を用い、この侵入距離を短くすることにより、高分解能を得ることも可能である。 $\lambda=488\text{ nm}$ の場合(侵入距離は約 80 nm)の結果はそれを明確に示している。

1.3 微小開口による信号の集光

ここまでは、いかに局所的に光励起をおこなうかということを中心に話を進めてきた。ここで、半導体試料測定上の新たな問題点として、キャリアの拡散による分解能の低下について考える。頻繁に起こるこのような状況下では、信号の集光方法にも工夫が必要となる。図3(a)はそのようすを模式的に描いたものである。通常光励起された電子、ホールはフォトルミネセンスを放出するまでの間、それぞれの移動度にしたがい、空間的に拡散する。その距離は試料に強く依存するが、マイクロオーダーにおよぶ場合が多い。そのため、いくら局所的にキャリアを生成しても、信号光を外部のレンズ系で集光する限り、その分解能は拡散距離、または回折限界によって制限されてしまう。これに対する解決策として、微小開口を通した信号の集光が分解能の向上をもたらすと期待されている^{7,15)}。ただし、そこで得られる分解能に関しては、単純に開口径では決まらず、プローブ先端形状などさまざまな要素が関わりあっていると考えられ、いまだ不明な点が多い。しかし、拡散距離、回折限界を超えた分解能を達成するには十分有効であることを、3.において具体的な成果として示す。

このように、開口を通した局所的な信号検出による分解能の向上が、これまでの顕微分光と比較した場合の注目すべき特長である。それにもかかわらず、実際の近接場分光の中でその適用例がほとんどみられないのは、開口による集光効率の低さに理由がある。この効率向上が近接場分光に携わる研究者の間での共通の課題となっている。一般に近接場プローブは、開口近傍において金属

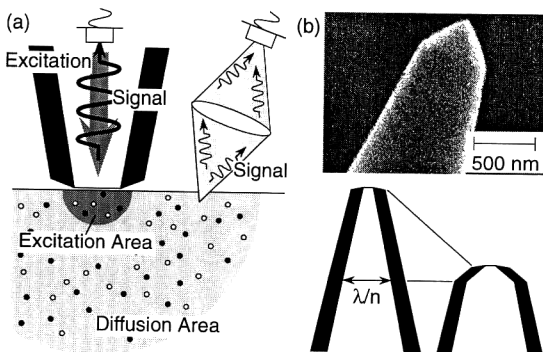


図3 (a) 局所検出による分解能の向上, (b) 二重テーパ形状による伝達効率の向上。

クラッド光導波路とみなすことができる。コア径が波長以下になるあたりから、カットオフの出現、金属クラッドによる吸収の増大などの影響が顕著になり、伝搬特性は大きく劣化する。そこで筆者らは、先端形状を図3(b)のように改良することにより、光の損失領域を短くし、高い伝搬効率を得ている¹⁷⁾(以下で紹介する測定例では、このようなプローブを用いている)。また最近では、カットオフをもたない表面プラズモンモードの利用も提案されており^{18,19)}、今後の進展が期待される。

2. 横方向 p-n 接合の多角的評価

横方向 p-n 接合は図4に示すように段差加工された GaAs 基板上に1種類のドーパントを用いるだけで作製される新奇な構造をもつ²⁰⁾。横方向という形状の特徴を生かし、将来面発光素子としての機能が期待されている。ここでは、伝導型の変化やキャリアのダイナミクスを探る空間分解分光の例として、この p-n 接合の遷移、活性領域の観察結果を紹介する。

まず、発光スペクトルの空間依存性によって p 型から n 型への遷移領域を決定した結果を図4に示す⁷⁾。開口を通して励起光を照射し、局所的な発光を外部レンズで集光することにより、スペクトル測定をおこなう。発光のピーク波長はドーパントの伝導型、濃度を強く反映するため、その変化のようすから、遷移領域の正確な評価が可能である。特に着目すべき結果としては、上接合と下接合でその領域の幅が大きく異なっていることがあ

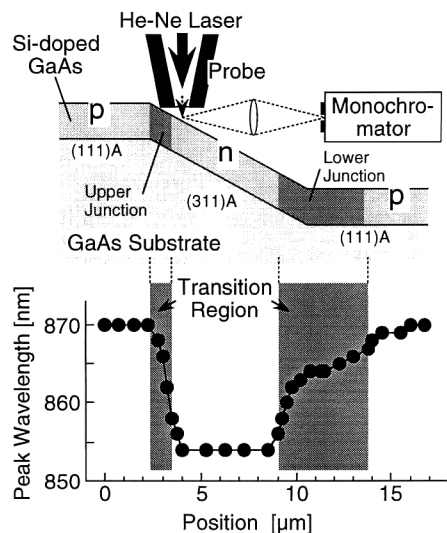


図4 横方向 p-n 接合の構造と発光スペクトルの測定方法、ならびに発光ピーク波長の位置依存性。

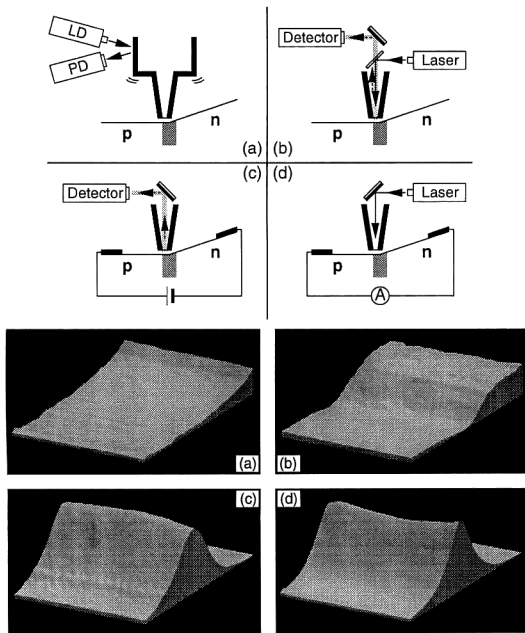


図5 p-n下接合における (a) シアフォース像, (b) フォトルミネセンス像, (c) 電流注入発光像, (d) 光電流像観察のための測定配置とその結果.

げられる。これは表面形状像（プローブ先端と試料表面間のシアフォース検出による凹凸像）で確認した，上と下での面方位の移り変わりの鋭さの違いによって説明される。

続いて，同様の試料に対して電極を設け，フォトルミネセンスだけではなく，電流注入発光，光電流も検出し，活性領域でのキャリアのふるまいを多角的に評価した結果について述べる。図5にそれらの測定配置と得られた画像（走査範囲は $4\ \mu\text{m} \times 6\ \mu\text{m}$ ）をそれぞれ示す。(b)~(d)の一連の測定は，装置間の接続の切り替えだけでおこなうことができるため，試料の同一箇所に対して，連続的な走査をおこなっている。下接合の活性領域において強い電流注入発光(c)と光電流(d)が観測されている。この領域でフォトルミネセンス強度(b)が逆に弱くなっているのは，光生成されたキャリアが内部電場によってそれぞれ発光に寄与しない方向にドリフトするためである⁷⁾。また，詳細は省略するが，これらの測定を通じ，電子とホールの拡散距離の実空間上での評価や p-n 界面の内部での傾きの見積りなども定量的におこなわれている⁸⁾。

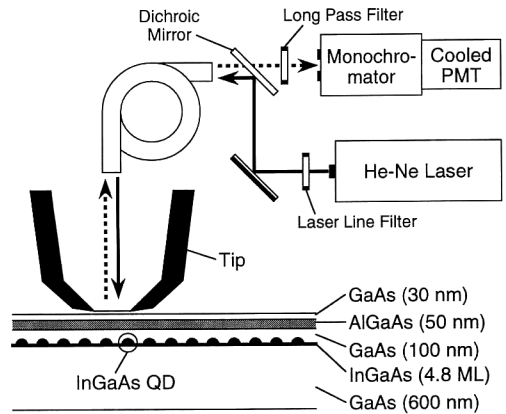


図6 量子ドット試料の構造とその発光観察の測定配置.

3. 低温における単一量子ドットの発光観測

半導体量子ドットは，離散的準位構造と強い光学遷移をもち，その特徴は発光スペクトルに強く反映される。またこのスペクトルの幅は，電子，ホール（励起子）の緩和のダイナミクスの情報を提供するため，その正確な評価が基礎，応用の両面から強く望まれている。従来の分光法においては，その分解能の低さのために，サイズゆらぎのある多数のドットを同時に観測してしまい，単一のドットに関する重要な知見が不均一性の中に埋もれてしまっていた。ここでは，近接場顕微鏡の分解能を生かした個別粒子分光の一例として，単一量子ドットの発光スペクトル，発光イメージング測定をおこなった結果を紹介する。

試料は図6に示すように GaAs 基板上に成長させた自己形成 InGaAs 量子ドットを用いる²⁾。ドットのサイズは直径 30 nm，高さ 15 nm 程度であり，成長密度は $2 \times 10^{10}\ \text{cm}^{-2}$ と非常に高い。試料，プローブ，スキャナーなどヘッド部をクライオスタット中に組み込むことにより，ヘリウム温度での測定が可能となっている。開口径 500 nm，先端角の大きな二重テーパ型プローブを用いて，He-Ne レーザー光を試料に照射する。キャリアは GaAs 層においても生成され，1~2 μm 拡散した後，大部分はドットの閉じ込め準位に緩和する。本実験では，観測ドット数をさらに制限するため，ドットからの発光もまた，開口を通じて集光する。

図7に発光スペクトルを示す。(a)はプローブを 1 μm 程度試料から離すことにより得られたファールド領域でのスペクトルである。多数のドットを同時に観測しているため，スペクトル形状はなめらかであり，

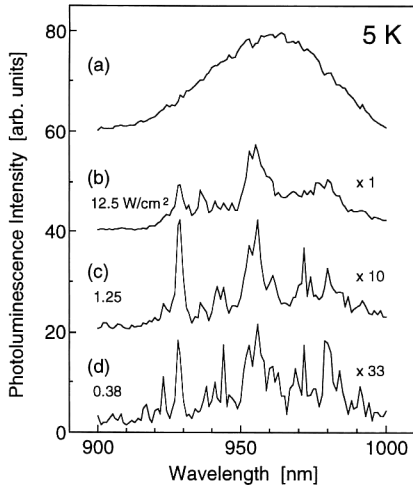


図7 (a) ファーフィールド, (b)~(d) ニアフィールドにおける量子ドットからの発光スペクトル。

サイズの不均一性の大きさを反映した情報だけを与えている。一方(b)~(d)は、プローブをニアフィールド領域まで接近させて測定したスペクトルであり、細かなピーク構造がみられる。この結果は、高分解能により観測ドット数が10個以下に制限され、個々のドットからの発光が分離して観測されていることを示している。(c)、(d)の励起強度領域では、スペクトル形状が変化せず、発光強度は線形に増加していることから最低励起状態からの発光のみを検出していることがわかる。それに対し、(b)の励起強度に達すると、最低励起状態の飽和が始まっていることがわかる。本測定では、最も鋭い発光線幅として波長分解能程度の0.5 meVが確認されている。

次に、発光の検出波長を923, 928, 968 nmに固定し、プローブを走査することにより得られた画像を図8(a)~(c)に示す。走査範囲は、 $3\ \mu\text{m} \times 3\ \mu\text{m}$ である。それぞれの波長に対し、全く異なった発光画像が得られている。1つ1つのスポットが同じ発光波長をもつ単一ドットの分布のようすを示している。スポット密度の違いは、図7(a)の不均一ひろがりを実空間上で再現している。図8(d)には比較的小さなスポットについて、信号強度の断面のようすを示す。ドットの実際のサイズが30 nmに対して、画像上でのスポットサイズが160 nm程度($\lambda/6$)となっている。励起されたキャリアはGaAs層で拡散しているため、この分解能は集光領域によって決定されていると解釈される。またこの大きさは開口径よりも十分小さく、開口を用いた集光が非常に効

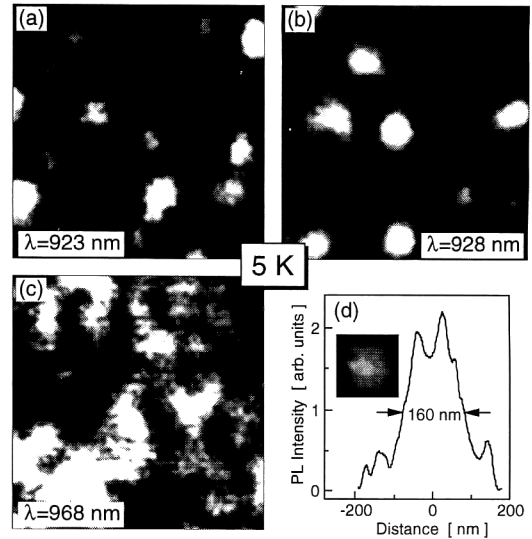


図8 (a)~(c) 検出波長の固定により得られた単一量子ドットからの発光画像, (d) 発光画像の断面。

果的であることを示している。装置の安定性、分解能の再現性についても良好であり、単一ドットの高次準位、あるいは励起子分子の発光も観測されるに至っている。

本稿ではまず、これまでの顕微分光技術と比較し、近接場光学顕微鏡がもつ際立った特長について詳述したが、それらは以下の2点にまとめられる。(1) エバネセント成分を利用した励起により、深さ方向にも局所的な励起が可能である、(2) 開口を通した集光により、キャリア拡散やバックグラウンド信号などの影響を大幅に除去できる。一方、感度に関してはいまだ大きな課題が残されている。近接場分光のもつ「高分解能」が従来の顕微分光の「簡便さ+高感度」という魅力に勝り、便利な道具として抵抗なく利用されるようになるためには、この問題の克服が必須である。3.で紹介した大きな開口をもつ改良型プローブによる高感度かつ高分解能測定はその取り組みの第一歩である。今後は高い分解能が本質的な重要性をもつ、反射、吸収、非線形信号などの測定が不自由なくおこなえるよう、システム性能の向上を進めていく必要がある。

ここでは特に、近接場顕微鏡による「観測」としての側面のみを述べた。しかしプローブを用いるという観点からは「制御」という潜在能力を引き出すことが可能である。プローブ先端の誘電体部あるいは金属部の試料への接近は、局所的な環境の変化をもたらす。その結果、たとえば発光物質に対しては発光寿命の変化や励起エネ

ルギーの移動を誘発する。また鋭い共鳴構造をもつ物質に対してはその共鳴シフトを生じさせ、新たな光機能を発現させるであろう。このように今後取り組むべき課題は山のようにある。波長にとらわれない自由な光操作という夢の技術を手にするための出発点として、近接場分光が担う役割は十分大きいと考えられる。

本稿をまとめるにあたり、横方向 p-n 接合に関しては、NHK 放送技研・斎藤信雄氏、量子ドット測定においては、NEC 光エレ研・西研一氏、東工大・横山吉隆氏（現 NEC）にそれぞれご協力いただきました。またプローブ作製については、神奈川科学技術アカデミー・物部秀二氏にお手伝いいただきました。これらの方々に深く感謝いたします。

文 献

- 1) J. W. P. Hsu, E. A. Fitzgerald, Y. H. Xie and P. J. Silverman: Appl. Phys. Lett., **65** (1994) 344-346.
- 2) M. J. Gregor, P. G. Blome, R. G. Ulbrich, P. Grossmann, S. Grosse, J. Feldmann, W. Stolz, E. O. Göbel, D. J. Arent, M. Bode, K. A. Bertness and J. M. Olson: Appl. Phys. Lett., **67** (1995) 3572-3574.
- 3) J. Liu and T. F. Kuech: Appl. Phys. Lett., **69** (1996) 662-664.
- 4) J. Liu, N. R. Perkins, M. N. Horton, J. M. Redwing, M. A. Tischler and T. F. Kuech: Appl. Phys. Lett., **69** (1996) 3519-3521.
- 5) G. Kolb, K. Karrai and G. Abstreiter: Appl. Phys. Lett., **65** (1994) 3090-3092.
- 6) M. S. Ünlü, B. B. Goldberg, W. D. Herzog, D. Sun and E. Towe: Appl. Phys. Lett., **67** (1995) 1862-1864.
- 7) T. Saiki, S. Mononobe, M. Ohtsu, N. Saito and J. Kusano: Appl. Phys. Lett., **67** (1995) 2191-2193.
- 8) T. Saiki, N. Saito, J. Kusano and M. Ohtsu: Appl. Phys. Lett., **69** (1996) 644-646.
- 9) S. K. Buratto, J. W. P. Hsu, E. Betzig, J. K. Trautman, R. B. Bylisma, C. C. Bahr and J. Cardillo: Appl. Phys. Lett., **65** (1994) 2654-2656.
- 10) U. B. -Ami, N. Tessler, N. B. -Ami, R. Nagar, G. Fish, K. Lieberman, G. Eisenstein, A. Lewis, J. M. Nielsen and A. M. -Larsen: Appl. Phys. Lett., **68** (1996) 2337-2669.
- 11) A. Richter, J. W. Tomm, Ch. Lienau and J. Luft: Appl. Phys. Lett., **69** (1996) 3981-3983.
- 12) R. D. Grober, T. D. Harris, J. K. Trautman, E. Betzig, W. Wegscheider, L. Pfeiffer and K. West: Appl. Phys. Lett., **64** (1994) 1421-1423.
- 13) H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer and K. W. West: Science, **264** (1994) 1740-1745.
- 14) Y. Toda, M. Kourogi, M. Ohtsu, Y. Nagamune and Y. Arakawa: Appl. Phys. Lett., **69** (1996) 827-829.
- 15) T. D. Harris, D. Gershoni, R. D. Grober, L. Pfeiffer, K. West and N. Chand: Appl. Phys. Lett., **68** (1996) 988-990.
- 16) F. Flack, N. Samarth, V. Nikitin, P. A. Crowell, J. Shi, J. Levy and D. D. Awschalom: Phys. Rev. B, **54** (1996) 17312-17315.
- 17) T. Saiki, S. Mononobe, M. Ohtsu, N. Saito and J. Kusano: Appl. Phys. Lett., **68** (1996) 2612-2614.
- 18) L. Novotny, D. W. Pohl and B. Hecht: Ultramicroscopy, **61** (1995) 1-9.
- 19) J. Takahara, S. Yamagishi, H. Taki, A. Morimoto and T. Kobayashi: Opt. Lett., **22** (1997) 475-477.
- 20) N. Saito, M. Yamaga, F. Sato, I. Fujimoto, M. Inai, T. Yamamoto and T. Watanabe: Inst. Phys. Conf. Ser., **136** (1994) 601-606.
- 21) K. Nishi, R. Mirin, D. Leonard, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff and A. C. Gossard: J. Appl. Phys., **80** (1996) 3466-3470.

(1997年5月29日受理)