



ナノイメージング分光の開拓と それを用いた半導体量子構造の 波動関数マッピングに関する研究

ナノの光で電子の波を照らす

松田 一成

京都大学化学研究所附属元素科学国際研究センター 助教授

はじめに

ナノスケールの世界では、電子の波として性質が顕著に表れる。量子力学では、箱型ポテンシャルの中に閉じ込められた電子の振る舞いは、その存在確率の空間分布を表す波（波動関数）がどのような形や拡がりを持っているかが重要である、と記述されている。逆に、その波動関数がどのような形や拡がりを持っているかがわかれば、電子の振る舞いやその電子が関与する物性のある程度予測することができる。半導体量子ドットは、量子情報処理や量子コンピューティングの実現において鍵をにぎる系であり、そのナノスケールの空間に3次的に閉じ込められた電子は、まさに箱型ポテンシャル中の電子そのものであると言え

Syngelによる超解像度顕微鏡の提案(1928年)

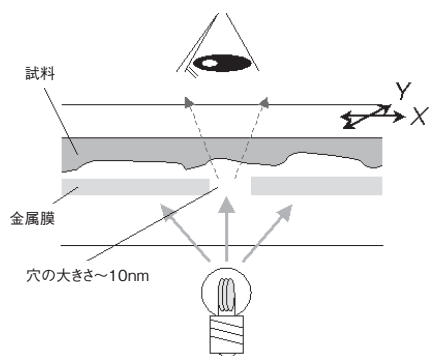


図1 Syngelによって提案された超解像度顕微鏡の原理
(近接場光学顕微鏡の原型)

る。その量子ドット中の電子の振る舞いを探るのに、光(可視光)は強力な手段であるが、残念ながらその波動関数を直接“見る”ことはできない。なぜなら量子ドットは、光の波長(500-1000nm)に比べその大きさ(数nm~100nm)がずっと小さく、光学顕微鏡をもってしてもその中の電子の様子を直接捉えることができないからである。我々は、この後で詳しく述べる近接場光学顕微鏡の空間分解能を極限まで高め(ナノサイズの光を実現することを意味する)、ナノイメージング分光という新しい手法を確立し、この波動関数を観察することに成功した。

回折限界に打ち勝つ

光学顕微鏡の解像度(分解能)は、光の波としての性質からくる回折により、波長の半分程度に制限される。この制限を乗り越えるために、これまで様々な努力がなされてきた。金属平板に空けられた波長より小さな窓(穴)に光を当てると、その窓の近傍だけに近接場光と呼ばれる光が発生する。これを照明光源として利用する超解像度の顕微鏡(近接場光学顕微鏡)の原理は、古く1920年代のSyngelらの提案まで遡る(図1)[1]。しかし、ナノスケールの窓を作製することが困難であるなどの技術的な問題から、可視光の領域でそれが実現したのは1980年代後半のこ

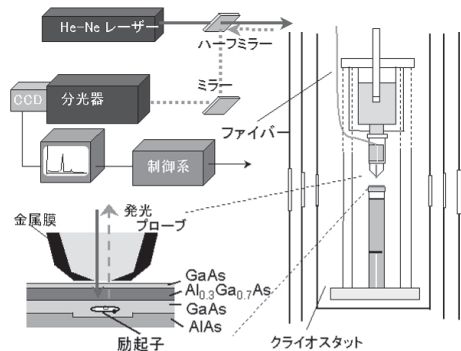
とである。実際の近接場光学顕微鏡は、鋭く尖らせた光ファイバー先端に波長よりも小さい窓となる開口を設け(この部分をプローブと呼ぶ)、そこから光を照らし試料表面をなぞりながら観察し像を得る(図2-a)。照らされる近接場光のサイズは開口の大きさと同程度であり、分解能は光波長と関係なく開口の大きさでのみ決定される。しかし、この顕微鏡の分解能は、その心臓部となるプローブの性能が十分でなく、残念ながら当初期待されたほど向上していない。この顕微鏡の空間分解能を上げる鍵は、いかに性能の良いプローブチップを用意するかという点にある。我々はこの点を十分に認識し、高性能なプローブチップを、光ファイバーをフッ酸溶液で2段階エッチングすることで作製した。さらに、遮光用の金属膜をコーティングしたプローブチップを試料表面に押し付ける方法で、極めて小さい開口(開口径20nm)を再現良く作製することができるようになった(図2-c)。

量子ドットの中をナノの光で探る

観察対象となる量子ドットは、分子線エピタキシー法で成長した厚さ5nmのガリウム・ヒ素層中に形成されている。この層中において、厚みが周りよりも1層だけ厚いステップをつくと、電子にとってそこがポテンシャルのくぼみとして働き、横方向に

図2

(a) 近接場光学顕微鏡のセットアップ



(b) プロブの電子顕微鏡写真

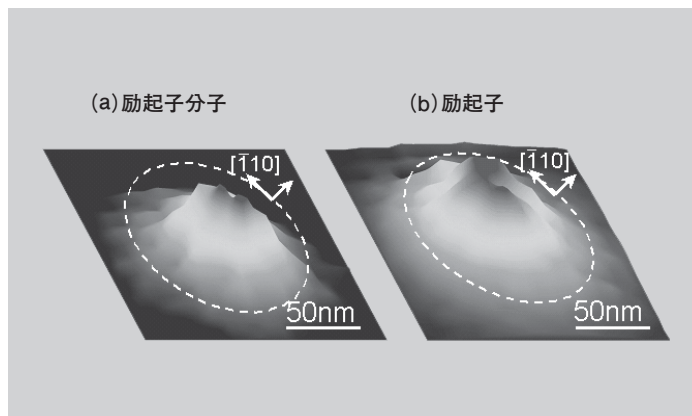
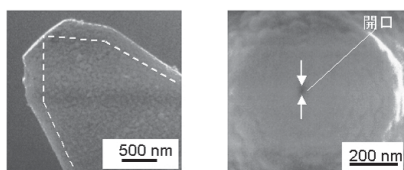


図3 (a) 励起子分子と(b) 励起子の波動関数マッピング
点線は、量子ドットのおよその大きさを表す

100-200nm、高さ5nmのディスクの形をした箱(量子ドット)の中に電子が閉じ込められる。この量子ドットは厚さ20nmのキャップ層で覆われているが、この厚みは測定での分解能を低下させないように精密に設計された値である。我々は、卓越したプローブ作製技術と最適化された試料構造により、近接場光学顕微鏡を使い半導体量子構造の空間分解能30nm(波長の約1/25)でのイメージング・分光を行うことに成功した[2,3]。

量子ドットにそのバンドギャップよりも高いエネルギーをもつ光を当てると、電子を伝導帯に励起し、価電子帯に電子の抜けた穴として正孔(ホール)が創られる。電子と正孔は互いに逆の電荷をもつためクーロン力で引き合い、励起子と呼ばれる束縛状態を形成する。励起子をつくる電子と正孔が互いにクーロン力で引き合っている様は、水素原子での電子と陽子の関係になぞらえることができる。また、2つの水素原子が水素分子をつくるように、2つの励起子(2つの電子と2つの正孔)は励起子分子と呼ばれる束縛状態をつくる。この時、励起子のボーア半径(励起子の大きさ)は10nm程度であり、励起子(分子)は大きな箱(量子ドット)の中に閉じ込められた水素原子(分子)様の複合粒子として、電子と同様波のように振舞う。ここで、量子ドットの中での励起子の存在確率(波動関数

の振幅)が、発光強度に比例することを利用し、量子ドットの大きさ(100-200nm)よりも小さな窓(30nm)で発光の空間分布を測定すれば、励起子波動関数の拡がりや形を実験的に知ることができる。実際に、プローブチップで表面をなぞりながら励起子と励起子分子からの発光強度をマッピング(ナノイメージング分光)した結果が(図3-a,b)である。両イメージともに似た形をしているが、励起子分子のイメージの拡がり励起子のそれと比べて一回り小さくなっていることがわかる。ここで励起子発光の空間分布は先に述べたように、直接、励起子の波動関数の振幅をマッピングしたものになり、このナノイメージング分光によって初めて励起子の波動関数マッピングが可能となった。一方で、励起子分子の発光がより狭い領域に閉じ込められているのは、2つの励起子間に働いている引力的な相互作用と励起子間の相関を反映した結果に起因している[2]。

今後の展望

量子ドットは、量子情報処理や量子コンピューティング実現において鍵をにぎるシステムであり、その量子状態(波動関数)が見えるようになったことは、より高度な量子デバイス実現に向けた大きな進展をもたらすと考えられる。また、ここで確立したナノイメージング分光は、半導体量子構造に限らず様々な物質がそのターゲットとなり、現在盛んに研究がなされている光誘起相転移現象[4]やカーボンナノチューブの光物性[5]などを研究する上で強力なツールとなるであろう。これらをきっかけとして、これまで物理分野の限られたユーザーのみが利用していた近接場光学顕微鏡が、“ナノスケールの解像度をもつ光学顕微鏡”として、化学・生物分野などの幅広い分野で活用され、その特徴を生かした新しいアプリケーションの開拓に大きく寄与することが今後期待される。

References (参考文献)

- [1] E.Synge, Philosophical Magazine 6, 356(1928)
- [2] K.Matsuda, T.Saiki, S.Nomura, M.Mihara, Y.Aoyagi, S.Nair, and T.Takagahara, Phys. Rev. Lett. 91, 177401 (2003)
- [3] K.Matsuda, T.Saiki, T.Yamada, and T.Ishizuka, Appl. Phys. Lett. 85, 3077 (2004)
- [4] M.Chollet, L.Guerin, N.Uchida, S.Fukaya, H.Shimoda, T.Ishikawa, K.Matsuda, T.Hasegawa, A.Ota, H.Yamochi, G.Saito, R.Tazaki, S.Adachi, and S.Koshihara, Science 307, 86(2005)
- [5] H.Hirori, K.Matsuda, Y.Miyauchi, S.Maruyama, and Y.Kanemitsu, Phys. Rev. Lett. 97, 257401 (2006)