

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18360019
 研究課題名（和文） ナノプローブを用いた高精度電位測定とナノ構造中電子状態の解明に関する研究
 研究課題名（英文） Study on precise potential measurements by nano-probes and on investigation of electronic properties in nanostructures
 研究代表者
 高橋 琢二（TAKAHASHI TAKUJI）
 東京大学・生産技術研究所・准教授
 研究者番号：20222086

研究成果の概要（和文）：本研究では、ナノプローブの一種であるケルビン・プローブ・フォース顕微鏡（KFM）において、その動作モードに独自の改良を加え、電位測定における精度・空間分解能・信頼性の向上を図った。また、同手法を利用して、自己形成 InAs 量子ドット周囲の電位分布などの計測を行い、量子ドットへの電荷蓄積効果などについての議論を行った。さらに、光照射下での KFM 測定によって多結晶 Si 太陽電池材料の光起電力特性などの観測を行い、結晶粒界近傍での少数キャリア特性の劣化現象などを観測した。

研究成果の概要（英文）：We have added our original improvements on Kelvin probe microscopy (KFM) which is one kind of nano-probe techniques in order to ensure high accuracy, high spatial resolution, and high reliability in potential measurements. By means of this method, potential distribution around self-assembled InAs quantum dots was investigated and some electronic properties like a charging effect in the quantum dots were discussed. In addition, we observed photovoltaic properties on multicrystalline Si solar cell materials by KFM operated under light illumination and found the degradation of minority carrier dynamics around the grain boundary.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
平成18年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
平成19年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
平成20年度	3,300,000	990,000	4,290,000
年度			
年度			
総計	14,900,000	4,470,000	19,370,000

研究分野：半導体ナノエレクトロニクス

科研費の分科・細目：「応用物理学・工学基礎」・「薄膜・表面界面物性」

キーワード：ナノプローブ、ケルビンプローブフォース顕微鏡、高精度電位測定、
 ナノ構造中電子状態、量子準位、電荷蓄積効果、光起電力、少数キャリア特性

1. 研究開始当初の背景

KFM は、1991 年に Nonnenmacher らによって提案されたものであり、表面電位の計測

が可能であるが、従来の KFM では、電位決定の精度が必ずしも十分ではなく、また測定値の再現性にもやや欠ける点があることか

ら、測定された電位を定量的な議論に用い難いことが多い。そこで、本研究者らは、そのような問題を解決するために、KFM 測定の電位決定精度とその再現性を向上させる研究に取り組むこととした。KFM での電位決定には長距離力である静電引力を利用して一方、形状観察のために、通常、カンチレバーを周期的に振動させているため、KFM 動作中の探針-試料間距離変動の影響が懸念される。実際、本研究者らは、数値シミュレーションによって探針-試料間距離変動の影響の重要性を指摘するとともに、KFM カンチレバーに働く静電引力が探針-試料間距離の周期的変動に同期して変動していることを実験的にも明らかにしており、それらの影響を抑えることが、KFM 測定精度改善には極めて重要であると言える。一方、KFM の測定精度が向上すれば、将来のデバイス応用が期待されている量子ナノ構造等の評価に適用できるものと期待した。

2. 研究の目的

本申請課題では、ナノプローブ、すなわち KFM による精密・正確な電位計測系を構築し、それをを用いることによって量子ナノ構造中の電子状態に関する知見を獲得することを主たる目的とした。特に、KFM の空間分解能や測定精度にはまだ大きな改善の余地があるため、その基本動作原理に立ち返って、静電引力の長距離性による分解能の低下を防ぐための間欠バイアス法や静電引力に対する測定感度を向上させるためのサンプリング手法、電位決定の応答速度を向上するための新アルゴリズムなどを導入することで、精密電位計測のための技術として確立させることを第一の目標とした。一方、将来のデバイス応用を目指したナノ材料の研究が盛んに行われており、それらナノ材料中の電子状態を実スケールにて評価することの重要性が増加していることから、KFM によるナノ構造の電位測定を通じて、電子状態の理解と将来のデバイス応用への道付けに資することを第二の目標とした。

3. 研究の方法

(1) 間欠バイアス印加法の提案と導入

探針-試料間の距離変動の影響を排除しつつ、最近接点でのバイアス印加によって探針直下の電位情報を正しく抽出する、すなわち、電位計測の空間分解能と精度の同時改善が期待できる手法として、新たに間欠バイアス印加法を提案した。また、本研究者らにより開発された静電引力のサンプリング検出手法を同時に取り入れることとした。これらの手法の併用により、静電引力を誘起するための交流電圧を mV オーダにまで低減して測定上の擾乱を抑制し、電位測定精度を向上させ

ることを目指した。

(2) 静電引力スペクトルの観測

量子ドットなどのナノ構造において、KFM による電位測定を行うとともに、その電位フィードバックを停止した時の静電引力信号の直流バイアス依存性（我々は、これを静電引力スペクトルと呼ぶ。）を測定することにより、局在準位などへの電荷蓄積効果を観測することを目指した。

(3) 光照射 KFM の開発と多結晶 Si 太陽電池材料の評価

光照射下で KFM 測定を行えるようにすることにより、光起電力の値やその空間分布等を明らかにする計測手法を確立するとともに、同手法を太陽電池材料評価、特に少数キャリア特性の評価に適用することを目指した。この測定では、迷光の影響を避けるために、ピエゾ抵抗を利用した自己変位検知型カンチレバーを採用することとした。

4. 研究成果

(1) 間欠バイアス印加法の提案と導入

間欠バイアス法とサンプリング手法とを併用した KFM によって自己形成 InAs 量子ドット周囲の電位分布を観測した結果を図 1 に示す。ここでは、間欠バイアス法を利用した場合と通常のバイアス条件を利用した場合との比較を行っている。この図から、間欠バイアス法により、電位像のコントラストが明瞭化していることがわかる。また、電位像の断面プロファイルから、10nm 以下の領域で 100mV 程度の大きな電位変化が明瞭に観測されていることがわかり、本手法によって電位測定における空間分解能が向上して

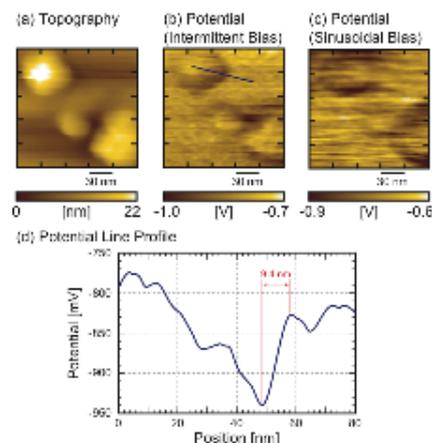


図 1. 自己形成 InAs 量子ドット周囲の(a)形状像、(b) 間欠バイアス KFM および(c) 通常の KFM により観測した電位分布像、ならびに(b)中の青線に沿った電位信号の(d)ラインプロファイル

いることが示された。これらの結果は、空間分解能の向上と測定精度の向上の両立が図れたことを示唆しており、今後、様々な材料における高精度電位測定へ展開できるものと期待される。

(2) 静電引力スペクトルの観測

サイズの異なる自己形成 InAs 量子ドット上で、静電引力スペクトル測定を行った結果、図2に示すように、スペクトルに非線形性が現れるとともに、それらの現れる電圧値が量子ドットのサイズに依存していることがわかった。この非線形性については、量子ドット中の量子準位への電荷蓄積効果によるものと考えている。今後、さらに詳細なスペクトル測定を行うことにより、離散準位の効果などの議論が行えるようになるものと期待される。

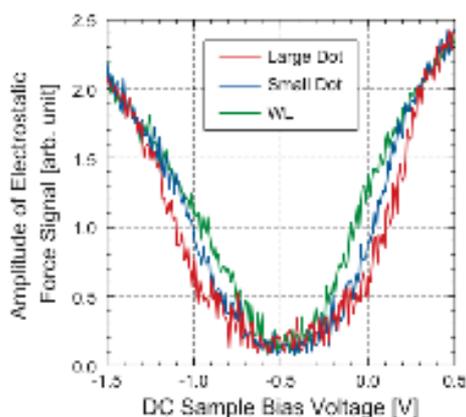


図2. 自己形成 InAs 量子ドット周囲で観測した静電引力スペクトル

(3) 光照射 KFM の開発と多結晶 Si 太陽電池材料の評価

自己変位検出型のカンチレバーを用いた KFM において、変位検出系と試料との間の静電的結合に由来する問題点が生じることを指摘した上でそれを回避する方法を提案することで、光照射下での KFM 測定を実現し、多結晶 Si 太陽電池材料における光起電力分布の計測を行った。その結果、図3に示すように、結晶粒ごとに光起電力がばらついていることや結晶粒界付近で光起電力が低下していることを示すデータを得た。また、光 KFM 手法を拡張することで、単に光起電力の空間分布測定のみならず、少数キャリアの拡散長や寿命、移動度など、各種ダイナミクスを評価できることを示した。この手法を利用して、多結晶シリコン太陽電池材料の評価を行った結果、結晶粒界近傍で明らかに各特性が劣化していることが示された。これは、結晶粒界が少数キャリアの再結合サイトとして働いていることを強く示唆している。

今後、このような太陽電池特性の局所的情

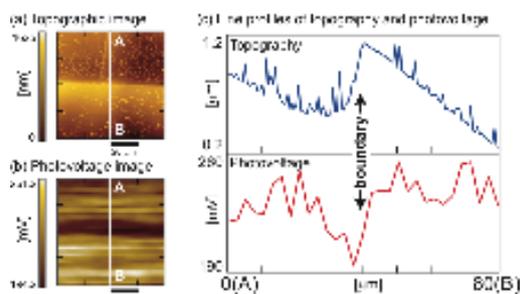


図3. 光 KFM で観測した多結晶 Si 太陽電池の(a)形状像と(b)光起電力像

報を利用することで、微小な結晶で構成される太陽電池材料の性能向上に貢献できるものと考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計5件)

- (1) M. Takihara, T. Takahashi, and T. Ujihara: "Study of minority carrier diffusion length in multicrystalline silicon solar cells using photoassisted Kelvin probe force microscopy", Appl. Phys. Lett., 95, 191908 (2009). (査読有)
- (2) T. Takahashi, T. Matsumoto, and S. Ono: "Improvement of KFM Performance by Intermittent Bias Application Method and by Sampling Detection of Cantilever Deflection", Ultramicroscopy, 109, 963–967 (2009). (査読有)
- (3) M. Takihara, T. Takahashi, and T. Ujihara: "Minority Carrier Lifetime in Polycrystalline Silicon Solar Cells Studied by Photoassisted Kelvin Probe Force Microscopy", Appl. Phys. Lett., 93, 021902 (2008). (査読有)
- (4) M. Takihara, T. Igarashi, T. Ujihara and T. Takahashi: "Photovoltage Mapping on Polycrystalline Silicon Solar Cells by Kelvin Probe Force Microscopy with Piezoresistive Cantilever", Jpn. J. Appl. Phys., 46, 5548-5551 (2007). (査読有)
- (5) T. Takahashi: "Scanning Probe Methods for Characterization of Electrical Properties in Nano-materials", Proceedings on 6th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, 163 (2006). (査読有)

〔学会発表〕(計37件)

- (1) 山田俊介, 高橋琢二: 「GaAs 上自己形成 InAs 量子ドットにおける静電気力スペクト

- ルの観測-II」, 第 57 回春季応用物理学会, 20a-TR-4, 平塚, 3月20日(2010).
- (2) S. Yamada and T. Takahashi: "Electrostatic Force Spectra on InAs Quantum Dots on GaAs Obtained by Noncontact AFM with a Conductive Tip", 17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17), S4-43, Atagawa, Japan, December 10th (2009).
- (3) 山田俊介, 高橋琢二: 「GaAs 上自己形成 InAs 量子ドットにおける静電気力スペクトルの観測」, 第 70 回応用物理学会学術講演会, 9p-L-13, 富山, 9月9日(2009).
- (4) 高橋琢二, 瀧原昌輝: 「光 KFM による多結晶シリコン太陽電池の局所的物性評価」, 第 56 回春季応用物理学会, 31p-TG-6, 筑波大学, つくば, 3月31日(2009).
- (5) M. Takihara and T. Takahashi: "Photoassisted Kelvin Probe Force Microscopy for Measuring Minority Carrier Lifetime in Solar Cell Materials", 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16), S4-26, Atagawa, Japan, December 11th (2008).
- (6) M. Takihara, T. Ujihara, and T. Takahashi: "Multiple Characterization of Minority Carriers in Polycrystalline Silicon Solar Cells by Photoassisted Kelvin Probe Force Microscopy", 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16), S4-25, Atagawa, Japan, December 11th (2008).
- (7) 瀧原昌輝, 高橋琢二: 「光 KFM による少数キャリアライフタイム測定の妥当性の検証」, 第 69 回応用物理学会学術講演会, 3a-S-6, 名古屋, 9月3日(2008).
- (8) M. Takihara, T. Ujihara, and T. Takahashi: "Photo-assisted Kelvin Probe Force Microscopy for Investigating Minority Carrier Dynamics in Polycrystalline Silicon Solar Cells", International Conference on Nanoscience+Technology (ICN+T 2008), SP-TuM11, Keystone, USA, July 22nd (2008).
- (9) T. Takahashi, T. Matsumoto and S. Ono: "Intermittent Bias Application Method for High Performance KFM", International Conference on Nanoscience+Technology (ICN+T 2008), SP-TuM12, Keystone, USA, July 22nd (2008).
- (10) T. Takahashi, T. Matsumoto, and S. Ono: "Improvement of KFM Performance by Intermittent Bias Application Method and by Sampling Detection of Cantilever Deflection", International Scanning Probe Microscopy Conference (Seattle 08), P-18, Seattle, USA, June 23rd (2008).
- (11) T. Takahashi, M. Takihara, and T. Ujihara: "Minority Carrier Dynamics in Polycrystalline Silicon Solar Cell Investigated by Photo-assisted Kelvin Probe Force Microscopy", International Scanning Probe Microscopy Conference (Seattle 08), O-7, Seattle, USA, June 22nd (2008).
- (12) M. Takihara, T. Ujihara and T. Takahashi: "Minority Carrier Dynamics in Polycrystalline Silicon Solar Cells Studied by Photo-assisted Kelvin Probe Force Microscopy", 33rd IEEE Photovoltaic Specialists Conference (PVSC 33), #339, San Diego, USA, May 14th (2008).
- (13) 瀧原昌輝, 宇治原徹, 高橋琢二: 「光 KFM による多結晶 Si 太陽電池の少数キャリアライフタイム測定」, 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 30a-ZC-2, 千葉, 3月30日(2008).
- (14) 瀧原昌輝, 宇治原徹, 高橋琢二: 「光 KFM による多結晶 Si 太陽電池の少数キャリア拡散長及び移動度測定」, 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 30a-ZC-3, 千葉, 3月30日(2008).
- (15) 松本忠久, 小野志垂之, 高橋琢二: 「間欠バイアス KFM を利用した静電引力の距離依存性に関する検討」, 第 55 回応用物理学関係連合講演会, 29a-Q-12, 千葉, 3月29日(2008).
- (16) M. Takihara, T. Ujihara and T. Takahashi: "Minority Carrier Dynamics in Polycrystalline Silicon Solar Cells Studied by Photo-assisted Kelvin Probe Force Microscopy", 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15), S10-5, Atagawa, Japan, December 8th (2007).
- (17) T. Matsumoto, S. Ono and T. Takahashi: "Influence of a Long-range Feature of an Electrostatic Force and Effectiveness of Intermittent Bias Application Method in Kelvin Probe Force Microscopy", 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15), S4-79, Atagawa, Japan, December 6th (2007).
- (18) M. Takihara, T. Ujihara and T. Takahashi: "Minority Carrier Dynamics in Polycrystalline Silicon Solar Cells Studied by Photo-assisted Kelvin Probe Force Microscopy", 17th International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-17), 4P-P2-53, Fukuoka, Japan, December 4th (2007).
- (19) M. Takihara, T. Igarashi, T. Ujihara and T. Takahashi: "Photovoltage Mapping on Polycrystalline Silicon Solar Cells by Kelvin Probe Force Microscopy", 22nd

European Photovoltaic Solar Energy Conference (22nd EU-PVSEC), 1CV.2.12, Milano, Italy, September 5th (2007).

(20) M. Takihara, T. Igarashi, T. Ujihara and T. Takahashi: "Photovoltage Mapping on Polycrystalline Silicon Solar Cells by Kelvin Probe Force Microscopy", 17th International Vacuum Congress (IVC-17) / 13th International Conference on Surface Science (ICSS-13) / International Conference on Nano Science and Technology (ICN+T 2007), NSP1-84, Stockholm, Sweden, July 2nd (2007).

(21) M. Takihara, T. Ujihara and T. Takahashi: "Minority Carrier Diffusion Length Measurements on Polycrystalline Silicon Solar Cells by Kelvin Probe Force Microscopy", 17th International Vacuum Congress (IVC-17) / 13th International Conference on Surface Science (ICSS-13) / International Conference on Nano Science and Technology (ICN+T 2007), NSP1-86, Stockholm, Sweden, July 2nd (2007).

(22) T. Takahashi: "Electrostatic Force Spectroscopy on Self-assembled InAs Quantum Dots", International Scanning Probe Microscopy Conference (Jeju 2007 ISPM), PII-4-06, Jeju, Korea, June 12th (2007).

(23) T. Takahashi, M. Takihara, T. Igarashi and T. Ujihara: "Photovoltage Mapping on Polycrystalline Silicon Solar Cells Studied by Kelvin Probe Force Microscopy", International Scanning Probe Microscopy Conference (Jeju 2007 ISPM), OP3, Jeju, Korea, June 11th (2007).

(24) T. Takahashi, M. Takihara and T. Ujihara: "Minority Carrier Diffusion Length in Polycrystalline Silicon Solar Cell Materials Evaluated through Surface Photovoltage Measurements by Kelvin Probe Force Microscopy", International Scanning Probe Microscopy Conference (Jeju 2007 ISPM), PI-1-07, Jeju, Korea, June 11th (2007).

(25) 瀧原昌輝, 五十嵐考俊, 宇治原徹, 高橋琢二: 「ケルビンプローブフォース顕微鏡による多結晶シリコン太陽電池の局所的光起電力評価」, 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 27a-ZK-8, 神奈川, 3月27日 (2007).

(26) 瀧原昌輝, 宇治原徹, 高橋琢二: 「ケルビンプローブフォース顕微鏡による多結晶シリコン太陽電池の少数キャリア拡散長測定」, 第 54 回応用物理学関係連合講演会, 27a-ZK-9, 神奈川, 3月27日 (2007).

(27) M. Takihara, T. Igarashi, T. Ujihara and T. Takahashi: "Photovoltage Mapping

on Polycrystalline Silicon Solar Cells by KFM with Piezo-resistive Cantilever", 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM14), S10-3, Atagawa, December 9th (2006).

(28) M. Takihara, T. Ujihara and T. Takahashi: "Local Measurements of Minority Carrier Diffusion Length in Polycrystalline Silicon Solar Cells by Kelvin Probe Force Microscopy", 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM14), S4-35, Atagawa, December 7th (2006).

(29) M. Takihara, T. Igarashi, T. Ujihara and T. Takahashi: "Local Characterization of Photovoltage on Polycrystalline Silicon Solar Cells by KFM with Piezo-resistive Cantilever", International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2006), P-9-9, Yokohama, September 14th (2006).

(30) 瀧原昌輝, 五十嵐考俊, 宇治原徹, 高橋琢二: 「自己検知型カンチレバーを用いた KFM による多結晶シリコン太陽電池の局所的光起電力評価」, 第 67 回応用物理学学会学術講演会, 30a-Y-9, 草津, 8月30日 (2006).

(31) T. Takahashi, M. Takihara, T. Igarashi and T. Ujihara: "Local Photovoltage Measurements on Polycrystalline Silicon Solar Cells by KFM with Piezo-resistive Cantilever", International Conference on Nano science and Technology (ICN&T 2006), P634, Basel, Switzerland, July 31th (2006).

他

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

研究室ホームページ URL :

<http://www.spm.iis.u-tokyo.ac.jp/index-j.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 琢二 (TAKAHASHI TAKUJI)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号 : 20222086