

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19360161

研究課題名 (和文) 高分解能レーザーテラヘルツ放射顕微鏡の開発

研究課題名 (英文) Development of a high-resolution laser-THz-emission-microscope

研究代表者

斗内 政吉 (TONOUCHI MASAYOSHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・教授

研究者番号：40207593

研究成果の概要：

システム開発においては、固浸レンズやガルバノスキャナーを用いた新規なレーザーテラヘルツエミッション顕微鏡を構築し、空間分解能 $1\mu\text{m}$ 以下でかつスキャン時間が数秒であるといった高分解能かつ高速性能を持つことを確認した。また、このシステムを用が、半導体集積回路の欠陥検査等に有効であることを示した。一方、強誘電体からのテラヘルツ放射を、結晶構造および配向制御した薄膜を用いて系統的に観測し、そのメカニズムを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,100,000	2,730,000	11,830,000
2008年度	5,400,000	1,620,000	7,020,000
総計	14,500,000	4,350,000	18,850,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：テラヘルツ、フェムト秒レーザー、顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

近年様々な高分解能顕微鏡が開発され、ナノ材料・デバイス開発に大きな役割を果たしている。その中で、電荷の動きなどをダイナミックに追跡する時間分解局所物性イメージングは、超高速デバイスや新しい電子材料の開発に有効である。近年、フェムト秒レーザー等と近接場光学顕微鏡を組み合わせたシステムが開発されるなど、物質評価への利用が始まっていた。

フェムト秒レーザー照射により誘起される様々な物理現象の一つに、テラヘルツ電磁波の発生がある。電子材料・デバイス内部に

は、様々なポテンシャルの違いによる内部電界が存在し（小さければ外部電界を印加することで）、光電荷の発生により局所電流が流れる。その電流の時間変化（微分）により電磁波が励起・放射され、テラヘルツ波を観測することで、ダイナミックな物性が議論できる。この手法は、テラヘルツ時間領域分光法（THz-TDS）において、テラヘルツ放射分光（THz-Emission-Spectroscopy）として、その利用が期待されていた。

代表者は、それまで様々な電子材料からのテラヘルツ波の発生とその応用としてレーザーテラヘルツ放射顕微鏡 (LTEM) 開発に関

する研究を進めてきていた。例えば、新機能材料として注目されるマルチフェロイック薄膜 BiFeO_3 の自発分極ドメインの観測に成功している。この実験では、2つの金属電極間に電界を 200kV/cm 印加することで、一旦一方向に分極させ、逆方向に 120kV/cm の電界を印加することで、一部を反転させた後、外部電界を“ゼロ”とし、LTEMにより観測した結果と、その逆過程で得た結果を比較し、電極間で強誘電ドメインが一部 180 度反転していることを確認していた。その他超伝導電流など様々なイメージングが可能であることを明らかにしている。ただ、申請当時の分解能は約 $3\mu\text{m}$ であり、またイメージングに必要な時間も約1時間程度であった。LTEMの実用化および極微デバイスや極微構造への適用には、空間分解能の向上とスキャンの高速化が必須であった。

2. 研究の目的

本研究では、従来の LTEM をしのご空間分解能、具体的には $1\mu\text{m}$ 以下の空間分解能を有し、かつ高速スキャンが可能である新規な LTEM システムの開発し、その性能を評価すると共に、物質・デバイス評価への応用例を抽出することを目的とする。また、その観測を通して、局所場励起によるテラヘルツ波発生を科学し、テラヘルツ波工学の発展に資する成果を追求する。

光源としては既存のフェムト秒レーザーを利用し、波長 1560nm , 1058nm , 800nm の光源に対して、それぞれに対応した最適化を図る。高分解能化には従来の光学系の最適化の他、固浸レンズを用いたレーザーの集光を試みる固浸レンズ型における開発課題は、各種波長に対応した固浸レンズ材質の選定とガルバノミラーを用いたイメージングの高速化、およびビーム系の最適化である。目標分解能は 500nm (波長による) とする。

本研究のもう一つの課題は、特徴的な観測を行うことにある。まず、サブミクロン程度の分解能を議論するため、各種半導体上に、金属微粒子ならびに Ti/Au などのライン&スペース資料を作成し観測する。実際の材料・デバイス開発への応用を検討するため、強相関電子材料薄膜ならびに高周波 MMIC などの観測を行う。強相関電子材料薄膜での目標は、マンガ氧化物における光誘起相転移により発生した金属・絶縁体混合層におけるドメイン観測を行うこと、強誘電体薄膜 (BiFeO_3 など) における強誘電ドメインの観測ならびにフォトアシスト分極効果を科学すること、ならびに高温超伝導体中の磁束量子に観測に応用する。高周波 MMIC では、不良デバイスとの比較検討を行う。

3. 研究の方法

本研究遂行のために、波長 800nm および 1560nm のフェムト秒レーザー (パルス幅約 70fs) ならびに、テラヘルツ波の発生・観測システム (ロックインアンプなど) が利用可能である。本研究における研究開発課題は、

(1) 新規高速・高分解能 LTEM 開発、(2) 強相関電子材料観測に大別される。まず、各種波長にあわせた固浸レンズを設計・試作する。 $1.5\mu\text{m}$ 帯用にはシリコンレンズを用い、 800nm 用には、 MgO あるいはサファイアを用いる。期間を通して、その他の材料も検討する。次いで、ビームエクスペンダーとガルバノミラーを組み合わせたシステムを構築する。次いで、既存の蒸着装置により超薄膜を成長し、微粒子の観測を計測し、局所からのテラヘルツ波発生の様子を観測検討する。また、これまでに観測してきた BiFeO_3 , $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜などに対して、局所場に高電界を印加するための電極を作成し、局所場からのテラヘルツ発生ならびに高電界の影響などを科学する。また、外部から提供される高周波 MMIC・量子ドットなどを用いて、局所場のテラヘルツ発生科学の検討を始める。

室温系の観測では、 BiFeO_3 の強誘電ドメインの観測と、その光アシストドメイン形成などを科学する。(我々の実験では、大きな温度依存性が確認されていないので、室温のみの計測対象とする)。また、 InP 系 HEMT による MMIC などの提供を受け、デバイスレスポンスを観測すると共に、その不良個所特定や高周波応答評価などへの応用を試みる。

4. 研究成果

(1) 新規高速・高分解能 LTEM 開発

これまでに開発してきた LTEM は最高でその空間分解能は約 $3\mu\text{m}$ であった。この LTEM を様々な材料やデバイスの評価用ツールとして利用するためには、この空間分解能の向上が必要不可欠である。このため、波長

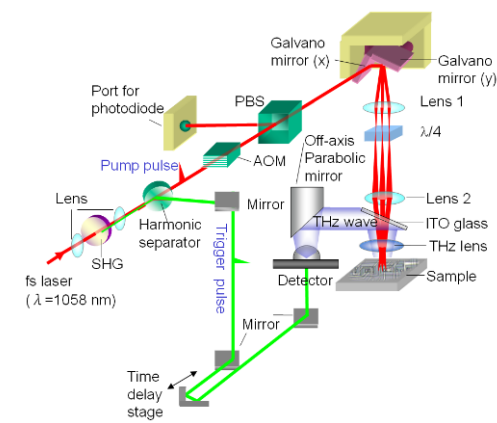


図1 レーザ走査型 LTEM のシステム概略図

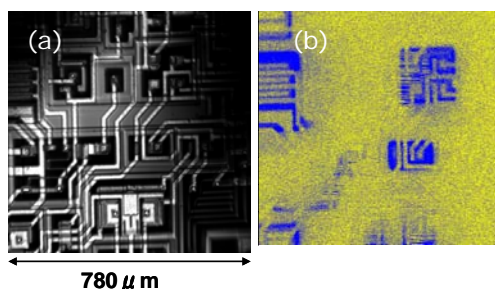


図 2 IC チップの(a)レーザーイメージング像および(b)LTEM イメージング像

780nm のレーザー光源用透過型 LTEM システムに固浸レンズ（屈折率 1.98）、ビームエキスパンダーを組み込み、その空間分解能の向上を行った。その結果、固浸レンズのみの使用により空間分解能を $1.5\mu\text{m}$ まで、またビームエキスパンダーのみの使用により空間分解能を $1.2\mu\text{m}$ まで向上させることに成功した。平成 20 年度にはこの両者をシステム中に同時に組み込むことにより、0.5 ミクロンのライン&スペース構造を有するテラヘルツ放射素子の LTEM イメージの観察に成功した。よって、目標としていた空間分解能 $0.5\mu\text{m}$ 程度を達成した。また、イメージングの高速化も同時に行った。従来のシステムでは試料を取り付けたステージ自体を移動させる方式を取っていたため、例えば、 500×500 画素のイメージ取得に最速でも 1 時間程度の観察時間を要していた。今回透過型 LTEM システムにガルバノ光スキャナー、高速光変調器 (AO モジュレーター)、高周波ロックインアンプを組み込むことにより、このイメージング速度の高速化を行った。

このシステムに用いたレーザーの波長は 1058nm である。レーザービームのフォーカスにはテラヘルツレンズを使い、さらに固浸レンズとしてレーザーおよびテラヘルツに対して透過性のある GaP を使ったものを作製し、組み込んだ (本成果については特許申請済み)。現在、このシステムを使うことにより、 512×512 ピクセルの LTEM 画像取得時間を従来型の 1 時間程度から数秒程度まで短縮することに成功しており、また空間分解能も $0.6\mu\text{m}$ 程度を達成している。またこのシステムを使えば、試料のレーザー反射イメージの同時観察も可能である。図 1 に今回構築したレーザー走査型 LTEM システムの概略図を示す。現在これらシステムを用いた LSI の故障評価実験を進めており、図 2 は IC チップのレーザーイメージング像および LTEM 像である。このように、集積回路の電界分布馬名亮に観察できている。今後の実用化にむけ最終段階に入っている。

(2) 強相関電子材料観測

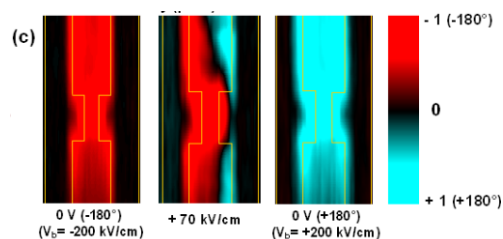


図 3 BFO 薄膜の分極反転のマッピング

① 強誘電体薄膜 (BiFeO₃ など) における強誘電ドメインの観測

(LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂AlTaO₆)_{0.7} (001) [LSAT] 基板上にパルスレーザー蒸着法を用いて BiFeO₃ 薄膜を作製し、その膜厚依存性を検証した。高分解能 X 線回折の逆格子マッピングの測定から、膜厚 75nm 以下では基板からの格子歪を伴った斜方晶の相、110nm 以上では部分的に歪が緩和された菱面体相、そしてその中間の膜厚では両者の共存した領域が見られることが分かった。磁化率測定の結果、110nm 以上の菱面体相では膜圧に依存せずバルクの結晶とほぼ同じ値であったが、斜方晶相では歪の影響と思われる磁化率のわずかな増加が見られた。

さらに、それぞれの膜厚の BiFeO₃ 薄膜にフェムト秒レーザーを照射し、そこから放射されるテラヘルツ波を観測した。この手法により薄膜の分極構造など強誘電特性を計測することが出来る。まず、各領域の薄膜のテラヘルツ波の放射効率を調べた結果、どの領域の薄膜からの放射される電磁波の強度にほとんど変化がなく、格子歪は放射効率にほとんど影響を与えないことが分かった。また、放射電磁波の強度 (ETH) のバイアス電界依存性から得られる P-E ヒステリシス曲線から、膜厚 75nm 以下の斜方晶相および 110nm 以上の菱面体相ではその形状にほとんど違いは見られなかったが、両者の共存する領域ではリーク電流が増加していることを確認した。これは、この領域では格子欠陥等が多数存在することに起因すると思われる。これらの結果を総合すると、格子歪自体は強誘電体特性にほとんど影響を与えないことが分かった。

② 光アシスト分極反転構造のマッピング

マルチフェロイック BFO 薄膜からのテラヘルツ放射によって光アシスト分極反転の高分解能イメージングを行った (図 3)。その結果から、光照射によって抗電場が減少し、強誘電分極反転が促進されることが明らかとなった。また、光照射は分極反転を促進するが、同時に電圧シフトやインプリントなど実用上問題となるような効果も同時に誘発していることがわかった。

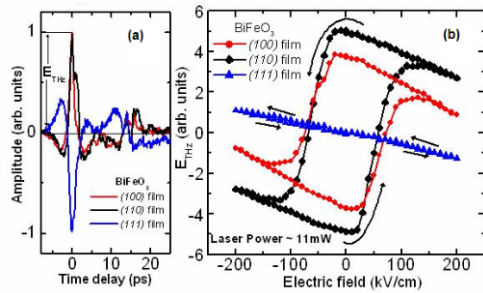


図 4 BFO 薄膜からの THz 放射の結晶方位依存性

③テラヘルツ電磁波放射メカニズムの検討

BiFeO₃ 薄膜へのフェムト秒レーザーを照射によるテラヘルツ電磁波発生メカニズムを検証するため、THz 電磁波放射の結晶方位依存性を計測した。(100)、(110)、(111)配向した 3 種類の BiFeO₃ 薄膜を作製し、テラヘルツ波放射特性を観測した。その結果、(100)、(110) 薄膜に関してはほぼ同様の結果が得られたが、自発分極方向が薄膜に垂直となる(111)配向膜ではヒステリシスが見られなかった(図 4)。このことは次の二つの超高速電荷変調過程が協調して存在していることを示唆している。一つ目は、フェムト秒レーザー励起による瞬間的な強誘電秩序の揺動によるテラヘルツ放射過程である。このときの放射強度は自発分極の時間による 2 次微分に比例する。この過程によるテラヘルツ放射強度は電界変化に対してヒステリシスを持つ。二つ目は、バイアス電圧に対してリニアに応答する成分で、光励起キャリアによる瞬時電流によるものである。以上の二つの過程は同時にほぼ同じ時間スケールで起こっていると考えられる。今回のテラヘルツ放射波形の計測において、超高速な強誘電分極構造の揺動とそれに続く起こる数ピコ秒での回復過程が観測された。この様に、非接触の外場による電荷秩序の変調が観測されたことは、BiFeO₃ を用いた不揮発性メモリ等の応用に向けて、画期的な成果である。

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 12 件)

①D.S. Rana, I. Kawayama, K.R. Mavan., K. Takahashi, H. Murakami, M. Tonouchi “Understanding the nature of ultrafast polarization dynamics of ferroelectric memory in the multiferroic BiFeO₃ thin

films”, *Advanced Materials*, Vol. 21, pp. 1-5, 2009 (査読有)

② S. Kim, H. Murakami, M. Tonouchi “Transmission-type laser THz emission microscope using a solid immersion lens” *IEEE JOURNAL OF SELECTED TOPICS IN QUANTUM ELECTRONICS*, Vol.14 pp.498-504, 2008 (査読有)

③ D.S. Rana, K. Takahashi, K.R. Mavan., I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi “Structural dependence of Terahertz radiation from multiferroic BiFeO₃ thin films” *Physical Review B*, Vol.77, pp.24105, 2008 (査読有)

④ K.R. Mavani., D.S. Rana, K. Takahashi, I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi “Effects of cation disorder on terahertz emission from half-doped manganite thin films” *Europhysicis Letters*, Vol.81, pp. 17009-17016, 2008 (査読有)

⑤ D. S. Rana, K. Takahashi, K. R. Mavani, I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi “Visualization of photoassisted polarization switching and its consequences in BiFeO₃ thin films probed by terahertz radiation” *Applied Physics Letters*, Vol.91, pp.031909-031911, 2007 (査読有)

⑥ H. Murakami, N.Uchida, R. Inoue, S. Kim, T. Kiwa, and M. Tonouchi “Laser Terahertz Emission Microscope” *Proc. of IEEE*, Vol.95, pp.1646-1657, 2007 (査読有)

[学会発表] (10 件)

①D.S.Rana, I.Kawayama, M.R.Mavani, K. Takahashi, H.Murakami, M.Tonouchi “Probing ultrafast ferroelectric polarization dynamics in multiferroic BiFeO₃ by terahertz emission spectroscopy” 2008年日本物理学会秋季大会, 2008/9/20, 岩手大学

②金子大輔、金鮮美、山下将嗣、松本徹、村上博成、大谷知行、斗内政吉 “ガルバノメーターを用いたレーザー走査型テラヘルツ放射顕微鏡の開発” 2008年秋季 第69回応用物理学会学術講演会,

2008/9/4, 中部大学

③水野将吏、金鮮美、川山巖、村上博成、斗内政吉

“レーザー走査型テラヘルツイメージングシステムの開発”

2008年秋季 第69回応用物理学会学術講演会, 2008/9/4, 中部大学

④S.Kim, M. Yamashita, T.

Matsumoto, H. Murakami, C. Otani, M. Tonouchi

“Novel laser scanning THz emission microscope”

EOS Annual Meeting 2008, 2008/9/29, パリ・フランス

⑤M. Tonouchi, D.S. Rana, K. Takahashi,

K.R. Mavani, I. Kawayama, H. Murakami

“Terahertz emission from BiFeO₃ by mean of direct optical modulation of ferroelectric spontaneous polarization”

International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology 2009, 2008/3/8, サンタバーバラ・米国

⑥S. Kim, H. Murakami, M. Tonouchi

“Laser Terahertz Emission Microscopy Toward High-Resolution Imaging”

Conference on Lasers and Electro-Optics, 2008/5/8, サンノゼ・米国

⑦S. Kim, H. Murakami, M. Tonouchi

“LSI imaging using Transmission-mode Laser THz emission”

LSI Testing Symposium (LSITS) 2007, 2007/11/9, Osaka

⑧ S. Kim, H. Koga, H. Murakami, M. Tonouchi

“Recent progress in laser terahertz emission microscopy toward high-resolution imaging”

The Joint 32nd International Conference on Infrared and Millimetre Waves and 15th International Conference on Terahertz Electronics (IRMMW-THz 2007), 2007/9/7, Cardiff, UK

⑨ K. R. Mavani, D. S. Rana, K. Takahashi, I. Kawayama, H. Murakami and M. Tonouchi

“Temperature Dependent THz Radiation from Charge-ordered Nd_{0.50}Ca_{0.48}Ba_{0.02}MnO₃ Manganite Thin Film”

2007 MRS Spring Meeting, 2007/4/10, San Francisco, USA

⑩D. S. Rana, K. Takahashi, K.R. Mavani, I. Kawayama, H. Murakami and M. Tonouchi
“Structural Dependence of THz-radiation from BiFeO₃ Thin Films”

2007 MRS Spring Meeting, 2007/4/10, San Francisco, USA

〔図書〕(計 1 件)

斗内政吉、村上博成、金鮮美、貴田憲明、高橋宏平、鈴木正人、井上亮太郎

“テラヘルツ技術総覧 (Handbook of Terahertz Technology)”

ネヌ・ジー・シー, 207, 16 ページ

〔産業財産権〕

○出願状況(計 1 件)

名称: 半導体検査装置および検査方法

発明者: 村上博成、斗内政吉、金鮮美、山下将嗣、大谷知行、松本徹、青木芳充

権利者: 浜松ホトニクス

種類: 特願

番号: 2008-223612

出願年月日: 2008/9/1

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

斗内 政吉 (TONOUCHI MASAYOSHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・教授

研究者番号: 40207593

(2) 研究分担者

村上 博成 (MURAKAMI HIRONARU)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・准教授

研究者番号: 30219901

川山 巖 (KAWAYAMA IWAO)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・助教

研究者番号: 10332264

(3) 連携研究者