

シンポジウム(口頭講演) | シンポジウム：ナノスケール計測技術の最前線～プローブ顕微鏡が拓く極微電子計測

■ 2025年9月7日(日) 13:30～17:05 | 会場N104 (共通講義棟北)

[7p-N104-1~8] ナノスケール計測技術の最前線～プローブ顕微鏡が拓く極微電子計測

一井 崇(京大)、大塚 洋一(阪大)

13:30～13:35

[7p-N104-1] オープニング

○一井 崇¹ (1.京大院工)

13:35～14:05

[7p-N104-2] 時間分解走査型非線形誘電率顕微鏡が拓く半導体物性のナノスケール計測

○山末 耕平¹ (1.東北大通研)

14:05～14:35

[7p-N104-3] 走査プローブ顕微鏡を用いた超高速ダイナミクス計測の最前線

○吉田 昭二¹ (1.筑大数物)

14:35～15:05

[7p-N104-4] 静電気力顕微鏡と光誘起力顕微鏡の最近の展開

○菅原 康弘¹、李 艶君¹ (1.阪大院工)

15:20～15:50

[7p-N104-5] テラヘルツ電場駆動トンネル電流による単一分子励起状態形成

○木村 謙介^{1,2} (1.理研SISL、2.東大応化)

15:50～16:05

[7p-N104-6] ヘテロダイン法による走査型インピーダンス顕微鏡の広周波数帯測定化と全固体電池解析への応用

○山岸 裕史¹、蒲生 浩忠¹、前田 泰¹、城間 純¹、清林 哲¹、竹市 信彦¹、佐野 光¹ (1.産総研)

16:05～16:35

[7p-N104-7] 時間分解ケルビンプローブフォース顕微鏡による有機薄膜トランジスタの微視的電気特性評価

○小林 圭¹ (1.京大工)

16:35～17:05

[7p-N104-8] 静電気力顕微鏡による電荷移動計測

○松本 卓也¹ (1.阪大院理)

シンポジウム(口頭講演) | シンポジウム：ナノスケール計測技術の最前線～プローブ顕微鏡が拓く極微電子計測

2025年9月7日(日) 13:30～17:05 | N104 (共通講義棟北)

[7p-N104-1~8] ナノスケール計測技術の最前線～プローブ顕微鏡が拓く極微電子計測

一井 崇(京大)、大塚 洋一(阪大)

13:30～13:35

[7p-N104-1] オープニング

○一井 崇¹ (1.京大院工)

キーワード：プローブ顕微鏡、ナノスケール計測

プローブ顕微鏡による電子物性計測技術は急速に発展を遂げ、空間分解能・時間分解能が飛躍的に向上し、半導体を中心とするさまざまな電子材料に応用されています。本シンポジウムでは、その最先端で活躍されている研究者を招き、これまでの技術的な進展から最新の研究動向と将来展望について紹介いただきます。

時間分解走査型非線形誘電率顕微鏡が拓く半導体物性の ナノスケール計測

Time-resolved scanning nonlinear dielectric microscopy for nanoscale characterization of semiconductor properties

東北大通研 °山末 耕平

Tohoku Univ., °Kohei Yamasue

E-mail: yamasue@riec.tohoku.ac.jp

走査型非線形誘電率顕微鏡 (SNDM) は導電性探針下の局所的な静電容量変化を高感度で検出するプローブ顕微鏡である [1]. SNDM を拡張した時間分解 SNDM が山岸, 長らにより開発され, 高速デジタル化技術やポスト信号処理を用いることで, 従来型の SNDM と比較して, 飛躍的な高速化・広帯域化や多重化を実現している [2, 3]. 近年, 時間分解 SNDM による半導体物性のナノスケール評価に関する技術開発が進展しており, 多数キャリア (活性ドーパント) 濃度分布観察のほか, 局所容量-電圧(CV)特性, 半導体-絶縁膜界面の界面欠陥密度分布観察 (局所 DLTS), さらにこれらの同時測定などが可能となっている [3]. これらの手法は, 半導体の微視的電荷状態やデバイス特性に関する理解を可能とする. 本講演では, 近年の時間分解 SNDM に関する最新の進展を述べる. ワイドバンドギャップ半導体, 原子層半導体への応用に関する成果, さらに最近の顕微分光法への発展を目指す研究を紹介する.

謝辞

本研究は東北大学未来科学技術共同研究センター・長康雄教授との共同研究として遂行されています. 常日頃より, 有益な御議論, 御助言を頂き, 心より感謝致します. 本研究の一部は JSPS 科研費 (16H06360, 20H02613, 24H00414) および NEDO SIP の助成を受けています.

参考文献

- [1] Y. Cho, Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy: Investigation of Ferroelectric, Dielectric, and Semiconductor Materials and Devices, Elsevier (2020).
- [2] Y. Yamagishi and Y. Cho, Appl. Phys. Lett. 111, 163103 (2017).
- [3] K. Yamasue and Y. Cho, Microelectron. Reliab. 135, 114588 (2022).

走査プローブ顕微鏡を用いた超高速ダイナミクス計測の最前線

Advances in Ultrafast Dynamics Measurements with Scanning Probe Microscopy

筑大数物¹ ○吉田 昭二¹

Univ. of Tsukuba¹ ○Shoji Yoshida

E-mail: yoshida.shoji.gu@u.tsukuba.ac.jp

次世代光電子デバイスでは、素子サイズがナノメートル (nm) スケール、動作周波数がテラヘルツ (THz) 帯に達しつつあり、素子性能の評価自体が困難になってきている。それに伴い、ナノ構造中の超高速ダイナミクスを高い時空間分解能で観測する手法の開発が進められている。中でも、走査プローブ顕微鏡と光学ポンプ・プローブ法の組み合わせにより、光の回折限界を超える原子〜ナノメートルスケールの空間分解能で、光キャリア^[1]、励起子^[2]、スピン^[3]、フォノン^[4]、分子振動^[5]などの多様な超高速現象の観測が可能となってきた。特にテラヘルツパルスを用いた時間分解走査トンネル顕微鏡 (THz-STM) は、当初は世界でも数グループに限られていたが、現在では 10 を超える研究グループが取り組むまでに発展し近年著しい進展を遂げている^[6,7]。THz-STM は、サブサイクルの THz パルスを STM 探針と試料間に照射し、トンネル電流を瞬間的に駆動することで、試料表面の瞬時の状態密度とその時間変化を捉える手法である。STM 本来の原子スケール空間分解能を維持しつつ超高速現象の観測が可能である。

本講演では、THz-STM の最新の研究動向とともに、我々が進めている 2 次元半導体の励起子ダイナミクス計測について紹介する。実験では、図 1 に示すようにフェムト秒パルス光 (517 nm、約 300 fs) により WSe₂/MoS₂ヘテロ構造中に励起子を生成し、その後照射される THz パルスにより誘起されるトンネル電流を通じて励起子ダイナミクスを計測した。図 1(b)に示すように、励起直後に THz 電流が急増し、続いて指数関数的な減衰が観測された。これは探針先端の強い THz 近接場によって励起子が解離し、生成されたキャリア (電子または正孔) がトンネルすることで生じたものであり、減衰時定数から局所的な励起子寿命が得られる。講演では、励起子ダイナミクスの実空間イメージングについても議論する。

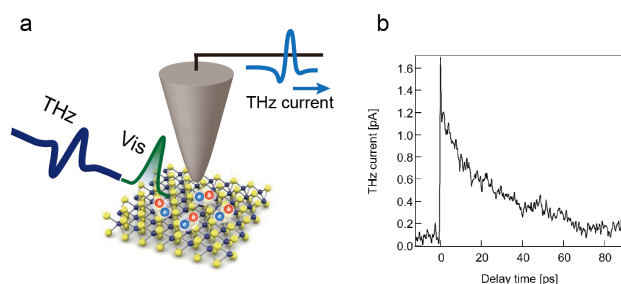


図 1 a. 時間分解テラヘルツ STM 計測の模式図 b. WSe₂/MoS₂ 積層ヘテロ構造上で得られた時間分解計測結果

- [1] Y. Terada *et al.*, Nat. Photonics **4**, 869 (2010). [2] H. Mogi *et al.*, Npj 2D Mater. Appl. **6**, (2022).
 [3] S. Yoshida *et al.*, Nat. Nanotechnol. **9**, 588 (2014). [4] S. Liu *et al.*, Sci Adv **8**, eabq5682 (2022).
 [5] T. L. Cocker *et al.*, Nature **539**, 263 (2016). [6] T. L. Cocker *et al.*, Nat. Photonics **7**, 620 (2013).
 [7] T. L. Cocker *et al.*, Nat. Photonics **15**, 558 (2021).

静電気力顕微鏡と光誘起力顕微鏡の最近の展開

Recent Developments of Electrostatic Force Microscopy and Photo-induced Force Microscopy

阪大院工¹ ○菅原 康弘¹, 李 艶君¹

Osaka Univ.¹, [°]Yasuhiro Sugawara¹, Yan Jun Li¹

E-mail: sugawara@ap.eng.osaka-u.ac.jp

1. 静電気力顕微鏡の展開

ケルビンプローブ力顕微鏡 (KPFM) を用いて半導体試料を測定する場合、その接触電位差 (CPD) は、バルクのフェルミ準位の位置だけでなく、半導体の表面ポテンシャルにも依存する。ここでは、半導体内部の界面状態密度を測定する高周波と低周波の交流バイアス電圧を用いる静電気力分光法について紹介する[1]。この分光法では、半導体中のバルク状態と界面状態間の電荷移動を考慮する。低周波の交流バイアス電圧を用いた場合、半導体内部の静電容量は界面準位に起因する静電容量と空乏層容量の和で与えられる。一方、高周波の交流バイアスを用いると、界面準位による静電容量の寄与は無視でき、空乏層容量が静電力に大きな影響を与える。実際、空乏領域では、低周波交流バイアスを印加した場合の曲線の傾きが、高周波交流バイアスを印加した場合よりもわずかに大きくなり、これらの傾きの差から界面状態密度を測定できる。

2. 光誘起力顕微鏡研究の展開

物質表面に局在する近接場光の強度分布を力として検出する光誘起力顕微鏡 (PiFM) (Fig. 1(A)) が、物質の局所的な光学応答を極めて高い分解能で画像化できる手法として注目されている[2]。PiFM では、AFM の金属探針と試料表面に光を照射し、金属探針に誘起される双極子と試料表面に誘起される双極子との間の静電気力相互作用を光誘起力として測定する。光誘起力は探針・試料間距離の 4 乗に反比例するため、物質の局所的な光学応答を高い空間分解能で可視化できる。

PiFM は、AFM をベースとしているため KPFM を用いることで、試料の電荷移動(または CPD の変化)を測定することができる。ここでは、超高真空において周波数変調(FM)方式で動作する PiFM を KPFM と組み合わせることにより、電荷移動の影響を受けた単一分子の光電場をサブナノスケールの空間分解能で可視化できることを紹介する (Fig. 1(B)) [3, 4]。

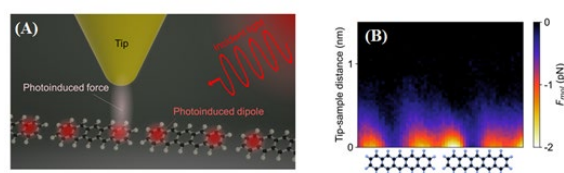


Fig. 1. (A) Configuration of PiFM system and (B) results of 2D mapping of photoinduced force of a pentacene molecule.

[1] R. Izumi, M. Miyazaki, Y. J. Li and Y. Sugawara, Beilstein J. Nanotechnology, **14**, (2023) 175.

[2] J. Yamanishi, Y. J. Li, Y. Sugawara, et al. Nature Commun. **12**, 3865 (2021).

[3] T. Yamamoto, Y. Sugawara, et al. ACS Nano, **18**, 1724 (2024).

[4] M. R. Shcherbakov, Y. Sugawara, et al. Nature Reviews Methods Primers **5**, 34 (2025).

テラヘルツ電場駆動トンネル電流による単一分子励起状態形成

Excited state formation in a single molecule by terahertz-field-driven tunneling current

理研 SISL¹, 東大応化², °木村 謙介^{1,2}

RIKEN SISL¹, Univ. Tokyo², °Kensuke Kimura^{1,2}

E-mail: kensuke.kimura@riken.jp

走査トンネル顕微鏡(STM)と光学測定を組み合わせた STM 発光分光法により、トンネル電流を励起源とした発光測定が可能である。光の回折限界を超えた原子スケールの空間分解能で光学測定を行えることから、様々な表面における局所光学現象が調べられてきた^[1]。一方で、従来の STM 発光分光法はトンネル電流が励起源であるがゆえに時間分解能に限られる。近年、STM の時間分解能を打破する試みとして、超短パルス光と STM を組み合わせた超高速 STM が注目されている^[2-7]。中でも、テラヘルツ(THz)領域の光パルスと STM を組み合わせた THz-STM が注目を集めている。本研究では、STM 発光分光法と THz-STM を融合させた新規な手法を開発し^[6]、THz 電場駆動トンネル電流による単一分子の励起状態形成に取り組んだ^[7]。

Yb ファイバーレーザーを用いて光整流効果により発生させた THz 光パルスを、極低温超高真空 STM に導き、STM 内部に備え付けられたレンズで探針直下に集光した(図 1a)。分子から生じる発光は、STM 内部に備え付けられた別のレンズにより集光され、STM チャンバー外に導かれ、高感度電荷結合素子(CCD)で検出される。試料は、3 から 4 原子層の NaCl 膜が成長した Ag(111)基板上に、Pd フタロシアニン(PdPc)分子を蒸着することで準備した。図 1b は従来の DC-STM と THz-STM により得られた PdPc 分子の STM 像である。THz のキャリアエンベロープ位相(CEP)とサンプル電圧を調整することで、DC 同様に THz-STM でも分子軌道が観測できることを確認した。図 1c は PdPc 分子の THz-STM 発光スペクトルである。THz 光パルスのメインピークが正方向である CEP = 0 のとき発光は現れないが(赤線)、負方向である CEP = π のとき 1.9 eV 付近にいくつかのピークが確認された(青線)。これは PdPc 分子の蛍光由来のピークであり、THz 誘起トンネル電流によって分子の励起状態が形成されたことを意味している。本講演では、図 1c に観られる CEP 依存性に基づき、励起状態形成機構について議論する。

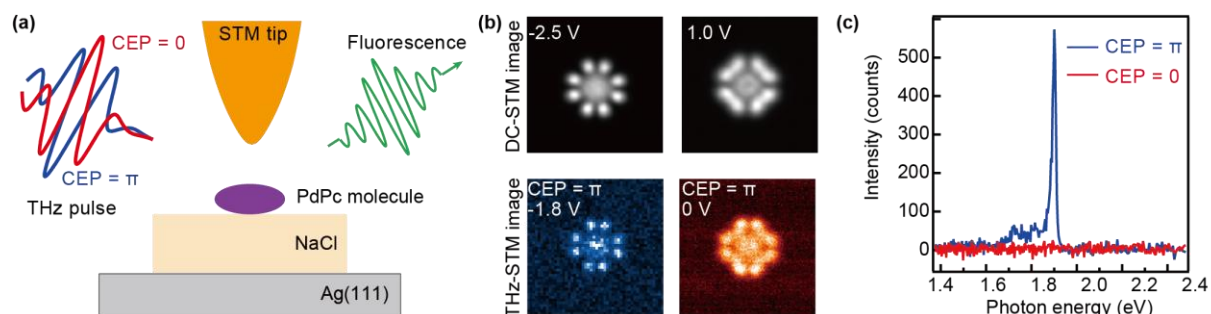


Fig. 1 (a) A schematic illustration of THz-STML measurement. (b) DC- and THz-STM images of a PdPc molecule. (c) THz-STL spectra of PdPc/NaCl/Ag(111). Red : CEP = 0, Blue : CEP = π . $E_{\text{THz}} = \pm 80$ cm/V, 3 min, $V = 0$ V.

[1] Kuhnke *et al.*, *Chem. Rev.* 117, 5174 (2017). [2] Terada *et al.*, *Nat. Photon.* 4, 869 (2010). [3] Cocker *et al.*, *Nat. Photon.* 7, 620 (2013). [4] Yoshioka *et al.*, *Nat. Photon.* 10, 762 (2016). [5] Yoshida *et al.*, *ACS photon.* 8, 315 (2021). [6] Kimura *et al.*, *ACS photon* 8, 982 (2021). [7] Kimura *et al.*, *Science* 387, 6738 (2025).

ヘテロダイン法による走査型インピーダンス顕微鏡の 広周波数帯測定化と全固体電池解析への応用

Wide frequency range measurement of scanning impedance microscopy
using heterodyne method and its application to analysis of all-solid-state batteries

産総研 °山岸 裕史, 蒲生 浩忠, 前田 泰, 城間 純, 清林 哲, 竹市 信彦, 佐野 光

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, °Yuji Yamagishi, Hirotada Gamo,

Yasushi Maeda, Zyun Siroma, Tetsu Kiyobayashi, Nobuhiko Takeichi, Hikaru Sano

E-mail: y.yamagishi@aist.go.jp

走査型インピーダンス顕微鏡 (SIM) は、静電気力顕微鏡やケルビンプローブ力顕微鏡と同様に、静電気力検出に基づく AFM 技術であり、主に半導体材料の解析に用いられてきた。SIM の開発当初は、静電気力の検出に AM 方式が用いられていたが^[1]、その後、FM 方式の SIM が開発され、空間分解能が向上した^[2]。近年では、蓄電材料の評価にも応用されつつある^[3]。しかし、FM 方式の SIM には、電池材料の性能評価において重要な 10kHz ~ 1MHz の周波数帯での測定が困難という課題があり、この点が SIM の電池材料への適用を制限していた。本研究では、静電気力の検出にヘテロダイン法^[4]を導入した SIM を開発し、測定可能な周波数帯を大幅に拡張 (1 Hz ~ 300 kHz) するとともに、本手法を全固体電池に適用して、電極内部のインピーダンス分布を解析した。

開発した計測法を用いて、Fig.1(a)に示す構造の全固体セルの正極断面に対して SIM 測定を実施した。FIB で研磨した断面試料に 3 種類の異なる周波数の交流電圧を印加し、その状態で SIM 像 (交流電圧の振幅と位相の分布) を取得した結果を Fig.1(d)に示す。交流電圧の周波数が高い場合 (100 kHz) には、振幅・位相像ともに電極上で一様な信号が検出された。一方、周波数が 100 Hz、20 Hz と低くなるにつれて、活物質/固体電解質界面における信号変化が顕著になることが分かった。これは、活物質/固体電解質界面のインピーダンス成分の寄与が、低周波領域で相対的に増加することを可視化していると考えられる。

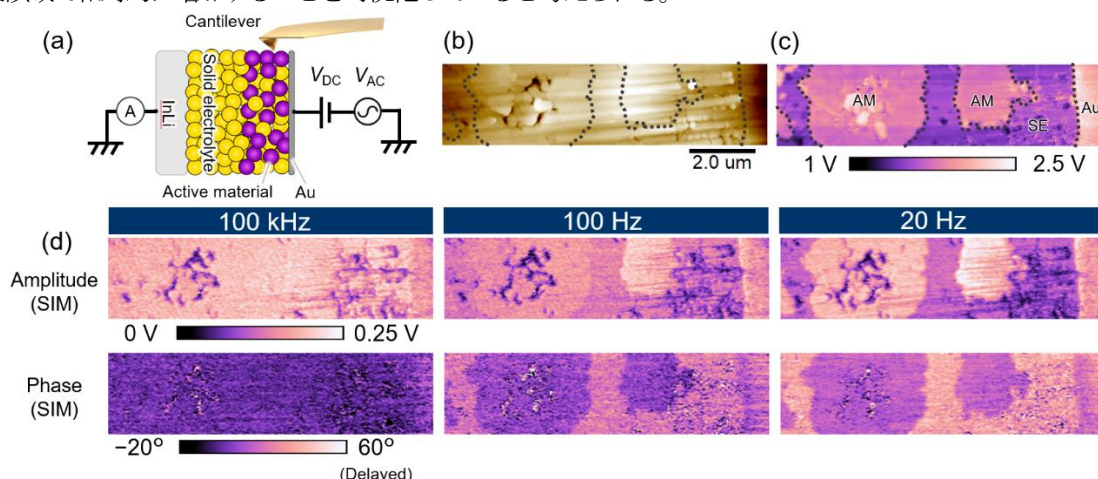


Fig. 1 (a) Schematic diagram of the SIM measurement. (b) Topography of the positive electrode cross-section. (c) Surface potential image obtained by KPFM. (d) Amplitude and phase images of SIM with 100 kHz, 100 Hz, and 20 Hz of the frequency of the AC voltage.

謝辞 本研究は NEDO 委託事業「次世代全固体蓄電池材料の評価・基盤技術開発 (SOLiD-Next, JPNP23005)」により実施された。

参考文献 [1] S.V. Kalinin et al., Appl. Phys. Lett. 78 (2001) 1306. [2] T. Kimura et al., J. Appl. Phys. 118 (2015). [3] N. Ishida, J. Phys. Chem. C 126 (2022) 17627. [4] Y. Sugawara et al, Appl. Phys. Lett. 100 (2012) 223104.

時間分解ケルビンプローブフォース顕微鏡による 有機薄膜トランジスタの微視的電気特性評価

Local Electrical Characterization of Organic Thin-Film Transistors

Using Time-Resolved Kelvin-probe Force Microscopy

京大工¹, °小林 圭¹

Kyoto Univ.¹, °Kei Kobayashi¹

E-mail: keicoba@iic.kyoto-u.ac.jp

有機薄膜トランジスタ (OTFT) は、低コストでフレキシブルな電子回路への応用が期待されており、その研究が盛んに行われている。有機薄膜トランジスタの動作速度は、注入、輸送、拡散過程など、数百 ns の時間スケールで起こる有機薄膜中のキャリアダイナミクスと大きく関係しているため、有機薄膜中のキャリアダイナミクスの解明は、OTFT の性能を向上させる上で本質的に重要である。時間分解静電気力顕微鏡 (tr-EFM) および時間分解ケルビンプローブフォース顕微鏡 (tr-KPFM) は、原子間力顕微鏡 (AFM) における静電気力検出の変化を高速に検出することで、デバイス内のキャリア分布の時間変化、すなわちキャリアダイナミクスをナノスケールの空間分解能で可視化する技術であり、OTFT における微視的電気特性評価に有用である[1-3]。

当初、tr-KPFM を用いて、OTFT のキャリアダイナミクスを測定したところ、比較的低速なトラップ電荷の拡散過程のみが測定された[1]。そこで、tr-EFM (時間分解能 1 ms 程度) を用いたところ、電極に接した有機半導体グレイン (結晶粒) へ正孔が注入される様子 (キャリア注入過程) を可視化することができた[2]。また、AFM カンチレバーの振動波形を全て記録し、デジタル信号解析により共振周波数の変化を算出する瞬時周波数法を採用し、tr-EFM の時間分解能を AFM カンチレバーの時定数 (数 μs) を超える 1 μs まで高めることに成功した[3]。

一方、ポンプ・プローブ法 (PP 法) を用いれば、tr-EFM や tr-KPFM の時間分解能を μs オーダまたはそれ以下に高められることが示された[4,5]。われわれは、PP 法を用いた高速かつ定量的な電位分布計測法である PP-KPFM について、その時間・電位分解能をさらに高めるため、ヘテロダイン振幅変調 (HAM) 方式[6]を採用した PP-HAM-KFM を開発し、微視的電気特性評価を行った。

1. Y. Yamagishi, K. Kobayashi, T. Kimura, K. Noda, and H. Yamada, *Org. Electron.* **57**, 118 (2018).
2. T. Kimura, K. Kobayashi, Y. Yamagishi, and H. Yamada, *Appl. Phys. Lett.* **125**, 263301 (2024).
3. Y. Yamagishi, K. Kobayashi, T. Kimura, K. Noda, and H. Yamada, *J. Appl. Phys.* **135**, 125501 (2024).
4. J. Murawski, T. Mönch, P. Milde, M.P. Hein, S. Nicht, U. Zerweck-Trogisch, and L.M. Eng, *J. Appl. Phys.* **118**, 244502 (2015).
5. K. Kajimoto, K. Araki, Y. Usami, H. Ohoyama, and T. Matsumoto, *J. Phys. Chem. A* **124**, 5063 (2020).
6. Y. Sugawara, L. Kou, Z. Ma, T. Kamijo, Y. Naitoh, and Y.J. Li, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 223104 (2012).

静電気力顕微鏡による電荷移動計測

Charge migration probed by electrostatic force microscopy

松本 卓也

Takuya Matsumoto

E-mail: matsumoto-t@chem.sci.osaka-u.ac.jp

【序】静電気力顕微鏡は、高抵抗試料や孤立電荷など、定常的な制御電流が必要な走査トンネル顕微鏡では測定不可能な絶縁体基板上の試料の表面電荷を測定することができる。さらに、時間分解手法を用いることで、移動度に対応する電荷のマイグレーションも直接観測することができるので、有機デバイス、分子デバイスなどの計測に適している。本講演では、特に探針同期型時間分解静電気力顕微鏡、Fowler-Nordheim 分光法により、面内方向と垂直方向の電荷移動の観測例を中心に紹介する。

【探針同期型静電気力顕微鏡】

探針同期型静電気力顕微鏡は、ポンププローブ法に基づく時間分解測定をカンチレバー振動と同期して行う手法である（図1）。電荷の応答とカンチレバーの機械的な運動の相互作用を利用するため、回路的な時定数の影響を受けない計測が可能である。原子間力顕微鏡で用いるカンチレバーの共振周波数は広く、一般的な市販品で数 KHz から 1MHz 程度まで選択可能である。探針同期型静電気力顕微鏡では、試料－探針間の静電気力を検出するので、探針が試料表面に近接したときに検出感度が上昇する。従って、カンチレバーの共振周波数が高いほど、また、カンチレバーの振幅が大きいほど、高い時間分解能がえら得られることになる。

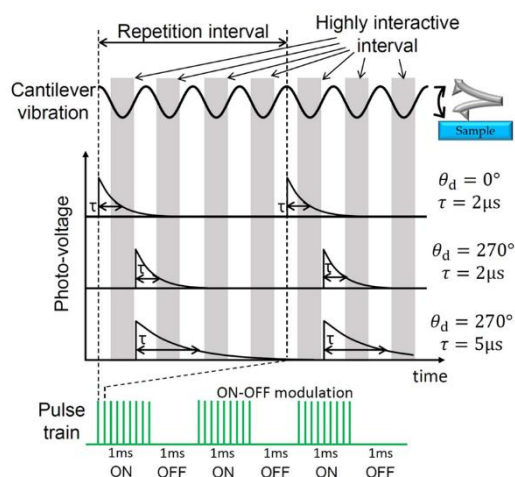


図1 探針同期型時間分解静電気力顕微鏡の原理図

この方法を用いて MDMO-PPV 薄膜（ドナー層）の上に部分的な C60 薄膜（アクセプター層）を有する二層有機太陽電池デバイスを構成し、C60 層のテラスエッジを含む領域の探針同期型時間分解静電気力測定を行った結果を紹介する[1]。

【Fowler-Nordheim 分光法】

電界放出トンネリングにおいて、基板と試料の間にある分子準位が共鳴することを利用して、分子準位の位置を求める方法である。SAM 膜上に形成した Ru 薄膜について行った解析例を紹介する。

[2]参考文献

[1] Communications Physics (2019), [2] ACS Appl. Mater. Interfaces (2023).

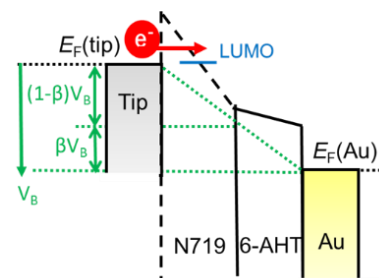


図2 N719/6-AHT/Au エネルギーダイアグラム