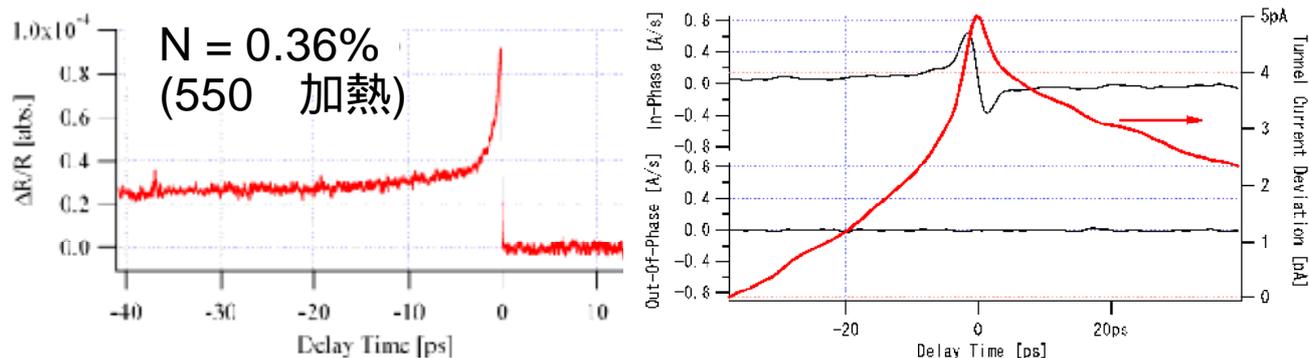


## 平成16年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究状況報告書

ふりがな		しげかわ ひでみ		所属研究機関・部局・職		筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授	
研究代表者氏名		重川 秀実					
研究課題名	和文	ナノ構造・超高速現象の解析制御と次世代新機能素子開発への展開					
	英文	Analysis and control of the ultra-fast phenomena in nano-scale and its application to the development of new functional materials and devices.					
研究経費		平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	総合計
16年度以降は内約額 金額単位：千円		61,900	9,400	9,400	9,400	9,400	99,500
研究組織（研究代表者及び研究分担者）							
氏名		所属研究機関・部局・職		現在の専門		役割分担（研究実施計画に対する分担事項）	
重川 秀実		筑波大学・数理物質科学研究科・教授		ナノ物性		時間分解 SPM の開発・制御	
大井川 治宏		筑波大学・数理物質科学研究科・講師		半導体表面物性		ナノ構造試料・素子の作製・開発	
保田 諭		筑波大学・数理物質科学研究科・学振特別研究員(PD)		ナノ物性		有機試料の合成・時間分解 SPM 実験	
当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）							
1. フェムト秒時間分解 SPM システム・測定手法の開発							
<p>時間的にフェムト秒領域の時間分解能を持ち、空間的には走査トンネル顕微鏡と同じく、原子レベルの空間分解能を持つ、時空両領域で極限領域の分解能を有する、新しい、分光・制御システムの開発。</p>							
2. 動作確認と既存の手法との比較							
<p>既存の、超短パルスレーザーを用いた、ポンププローブ法などの結果と比較し、新しいシステムの性能を評価する。</p>							
3. 解析手法の開発							
<p>こうした、多くの極限的な計測技術が絡む、新しい手法による結果を、正しく解析し評価することが可能な方法の開発。</p>							
4. 測定対象とする試料の構築と物性評価							
5. 具体的な試料に適用し新しい知見を得、デバイス開発への展開を行うとともに、手法の一般化をはかる。							

これまでの研究経過（研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。）

まず、フェムト秒時間分解 STM(FTR—STM)の開発に成功し、GaNAs を試料として、光励起によるキャリアの励起と、その後のキャリアの再結合によるバンド構造の緩和現象をトンネル電流としてとらえることに初めて成功した。図は、通常のポンププローブ法により測定した緩和現象と、同様の過程を FTR-STM により測定した結果である。ps オーダーのバンド構造の緩和が確認される。**トンネル電流をプローブとしているため、空間的には原子スケールの分解能を持つ。**これまで多くの試みがなされてきたが、**直接、時間分解を得られた初めての結果である。**測定原理が異なるため、異なる情報を得ることが可能で、両者を併せることにより、より深い解析を行うことができることになる。



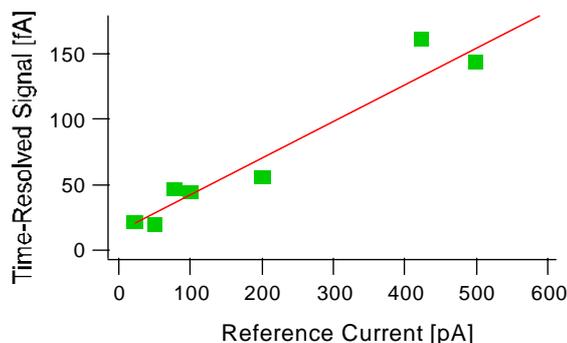
G a N A s 試料の光励起とバンド緩和の時間分解測定結果：(左) ポンププローブ法と(右) F T R - S T M 法

続いて、トンネル電流であることを評価した結果を示す。測定において、遅延時間の中央値をゼロ付近（少しはずして）固定し、変調を加えたときの信号を、設定電流に対してプロットしたものである。多光子吸収による電子放出とか、キャパシタンス変化による信号が見えているのであれば、トンネル電流に比例することは無いので、我々が観ているのが、トンネル確率の変化であることが裏付けられる。

こうした結果をもとに、グラファイト試料に対しても測定を行い、結果を得ることが可能となった（今後の計画の所に図を示す）。これは、単に、バンド構造の変化に伴う信号だけでなく、一般的な試料を対象として測定が可能であることを示すものである。

併せて開発中の、フォトボルテージの空間分布マッピングの手法も確立し、Ag/Si(100)表面の、ナノスケールの構造を対象として、測定を行い、フォトボルテージが、こうしたスケールで局所的に変化することを確認しており、上記、時間分解測定を行うことで、局所的な動的現象を追うことの必要性が示されている。

また、有機試料については、アゾベンゼン単一分子の光誘起応答の直接観察にも成功しており、今後、有機材料を含む系にも展開していく予定である。



特記事項（これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。）

成果の項目でも述べたように、フェムト秒時間分解 STM(FTR—STM)の開発に成功し、ps オーダーの光誘起緩和現象の測定を行うことに成功した。トンネル電流をプローブとしているため、空間的には原子スケールの分解能を持つ。これまで多くの試みがなされてきたが、直接、時間分解を得られた初めての結果である。

手法としては、国際特許を取得している。

研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文 (発表予定のものを記入することも可能。)  
の全著者名、論文名、学協会誌名、巻 (号)、最初と最後のページ、発表年 (西暦)、及び国際会議、学会等  
における発表状況について記入してください。)

1. "Light-modulated STS for nanoscale imaging of surface photovoltage."  
O. Takeuchi, S. Yoshida and H. Shigekawa .  
Appl. Phys. Lett. 84, 3645-3647 (2003).
2. "Novel phase switching of a single isomeric molecule and associated characteristic rectification."  
S. Yasuda, T. Nakamura, M. Matsumoto and H. Shigekawa .  
J. Am. Chem. Soc. 125, 16403-16433 (2003).
3. "Formation process of cyclodextrin necklace- Analysis of hydrogen bonding on a molecular level."  
K. Miyake, S. Yasuda, A. Harada, J. Sumaoka, M. Komiyama and H. Shigekawa .  
J. Am. Chem. Soc. 125, 5080-5085 (2003).
4. "Self-selective silicon adatom desorption using femtosecond laser pulse pairs and STM."  
D. N. Futaba, S. Tomiyama, R. Morita, M. Yamashita, and H. Shigekawa ,  
Appl. Phys. Lett. 83 2333-2335 (2003).
5. "A new atomic arrangement of nitrogen-induced GaAs(001)-(3x3) surface."  
T. Imayoshi, H. Oigawa, H. Shigekawa and H. Tokumoto, Surf. Sci. 540, L577-582 (2003).
6. "Thermodynamic analysis of the interaction between Kr adsorbates on Si(111)-7x7 surface."  
O. Takeuchi and H. Shigekawa, Jpn. J. Appl. Phys. 42, 4890-4904 (2003).
7. "Structures of self-assembled monolayer of squaraine molecules adsorbed on HOPG and Au(111)"  
S. Yasuda and H. Shigekawa, Jpn. J. Appl. Phys. 42, 4901-4904 (2003).
8. "What governs the Si(100) low temperature phase ?"  
H. Shigekawa, S. Yoshida, O. Takeuchi, H. Oigawa, Butsuri (in Japanese) 58, 503-511 (2003).
9. "Characteristic intra- and interunit interactions of the Kr atoms adsorbed on Si(111)-7x7."  
Y. Li, O. Takeuchi, D. Futaba, H. Oigawa, K. Miyake, H. Shigekawa and Y. Kuk ,  
Phys. Rev. B 68, 033301 (2003).
10. "Observation of cis-2-butene molecule on Pd(110) by cryogenic STM."  
Y. Saino, Y. Kim, T. Komeda, M. Kawai and H. Shigekawa, Surf. Sci. 536, L403-407 (2003).
11. "The p(2x2) phase of buckled dimers of Si(100) observed on n-type substrates below 40K by scanning tunneling microscope."  
K. Hata, S. Yoshida and H. Shigekawa, Phys. Rev. Lett. 80, 286104 (2002).
12. "Deposition dynamics of droplet-free Si nanoparticles in Ar gas using laser ablation."  
D. Takeuchi, D. Mizuta, T. Makimura, S. Yoshida, S. Fujita, K. Hata, H. Shigekawa, K. Murakami,  
Appl. Surf. Sci. 197, 674-678 (2002).
13. "Measurements of third- order dispersion effects for generation of high-repetition-rate, sub- three-  
cycle transform- limited pulses from a glass fiber."  
S. Nakamura, L. Li, N. Karasawa, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita,  
Jpn. J. Appl. Phys. 41,1369-1373(2002)
14. "Patterning DNA on  $\mu$  m scale on mica"  
M. Fujita, W. Mizutani, M. Gad, H. Shigekawa, H. Tokumoto,  
Ultramicroscopy 91,281-285(2002).
15. "Sensitivity improvement of spectral interferometry for direct electric-field reconstruction for the  
characterization of low-intensity femtosecond pulses"  
M. Hirasawa, N. Nakagawa, K. Yamamoto, R. Morita, H. Shigekawa, M. Yamashita,  
Appl. Phys., B74, S225-S229 (2002)
16. "Scanning Tunneling Microscopy Study of Water Molecules on Pd(110) at Cryogenic Temperature"  
T. Komeda, H. Fukidome, Y. Kim, M. Kawai, Y. Sainoo and H. Shigekawa .  
Jpn. J. Appl. Phys. 7B,4932-4935(2002)
17. "Development of time-resolved scanning tunneling microscopy in femtosecond range"  
O. Takeuchi R. Morita, M. Yamashita and H. Shigekawa .  
Jpn. J. Appl. Phys. 7B,4994-4997(2002)
18. "Characteristic Configuration of Cis-2-butene Molecule on Pd(110) Determined by Scanning  
Tunneling Microscopy."  
Y. Sainoo, Y. Kim, H. Fukidome, T. Komeda, M. Kawai and H. Shigekawa .  
Jpn. J. Appl. Phys. 7B,4976-4979(2002)
19. "Pseudo-Real Time Observation of the Dynamics of Phase Defect on Si(100) Surface"  
S. Yoshida, O. Takeuchi, K. Hata, R. Morita, M. Yamashita and H. Shigekawa .  
Jpn. J. Appl. Phys. 7B,5017-5020(2002)
20. "Few-optical-cycle pulse technology and its application to scanning tunneling microscope-Let's  
create "optical music"-"  
M. Yamashita, H. Shigekawa, R. Morita, N. Karasawa, O. Takeuchi, and M. Hirasawa,  
Ouyou Butsuri, in Japanese. 71,173-181 (2002)