

【基盤研究(S)】

大区分D



研究課題名 位相制御近接場によるハイブリッド極限時空間分光の開拓

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

たけだ じゅん

武田 淳

研究課題番号： 20H05662 研究者番号：60202165

キーワード： テラヘルツ、近接場分光、STM 発光、中赤外パルス

【研究の背景・目的】

極限的な時空間で電子状態や帯電状態を精密制御し、物質の構造や機能を実空間・実時間で自在に操作することは、ナノ科学、材料科学分野にとって最重要課題の1つである。高速化の観点においては、近年、近赤外光パルスのキャリアエンベロープ位相（光電場の位相）を変調することにより、アト秒領域での電子制御が達成された。しかしながら、この手法は、アト秒パルスによる操作や精密に造り込んだナノ構造体によって行われており、現実の多様な物質への適用は難しい。

一方、走査プローブ顕微鏡（SPM）は、物質の多様な現象や機能を高い空間分解能で明らかにする優れた分析ツールとして発展してきた。しかしながら、従来の SPM は時間分解能が低く、エネルギー変換過程などを決定している量子性は見過ごされている。

本研究では、研究代表者等が独自に開発した位相制御テラヘルツ走査トンネル顕微鏡（THz-STM）と STM 発光分光技術を巧みに組み合わせ、原子分解能とフェムト秒の時間分解能でトンネル電流及び発光を検出できる THz-STM 発光分光技術（THz-STL）を構築する。同時に、機能性分子・生体系分子の振動状態をも制御できる中赤外（MIR）近接場を用いた MIR-STM を開発する。そしてこれらを統合し、THz～MIR の周波数帯域において物質の多様な物性を極限の時空間で操作できる“ハイブリッド極限時空間分光技術”を開拓する（図1）。

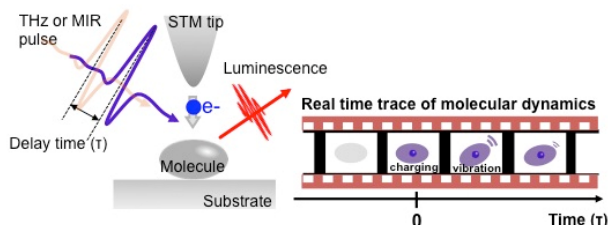


図1 ハイブリッド極限時空間分光の概念図

【研究の方法】

STM 発光分光とは、STM 探針から分子への電荷注入により励起状態を形成し、励起状態からの緩和により得られる微弱発光を検出する分光手法である。位相制御した THz パルスにより電荷注入を超高速に操作することで、超高速時間分解発光測定が可能となり、単一分子の励起状態ダイナミクスが追跡できる。THz 波は強誘電体プリズムと回折格子を用いた

パルス面傾斜法によって発生させ、代表者オリジナルの THz 位相シフタにより任意の位相を付与して THz 波形を制御する。一方、レーザーからの出力を中空光ファイバや非線形結晶を用いて広帯域化し、チャープミラーによりパルス圧縮して 10 フェムト秒程度の超短パルスを発生させる。それを薄い非線形結晶に入射し、差周波発生により位相安定な単一サイクル MIR の発生を行う。これらを統合しハイブリッド化した上で、単一分子の発光寿命計測、生体機能にとって重要な水素結合ネットワークの局所的構造ダイナミクスを追跡し制御する。

【期待される成果と意義】

本研究は、位相制御 THz-STM 発光分光技術を構築し、原子スケールかつフェムト秒の極限時空間で電子輸送及び光学特性を分析・制御できるツールを開発するものである。併せて、MIR 電場駆動の STM を開発し、単分子・単層膜の振動状態ダイナミクスをも追跡・制御できる分光技術に昇華させる。これらは世界に現存しないナノ科学・材料科学・生体科学全般に波及する究極のナノ計測技術となる。

また学術的には、物質科学分野の至上命題である“どこまで微細かつ高速に電子や分子振動を操作して物質の持つ諸物性を量子制御できるのか”の学術的問いへ挑戦するものである。

【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

- ・ K. Yoshioka, I. Katayama, Y. Minami, M. Kitajima, S. Yoshida, H. Shigekawa, and J. Takeda, "Real-space coherent manipulation of electrons in a single tunnel junction by single-cycle terahertz electric fields", *Nature Photon.* **10**, pp. 762-765 (2016).
- ・ K. Yoshioka, I. Katayama, Y. Arashida, A. Ban, Y. Kawada, K. Konishi, H. Takahashi, and J. Takeda, "Tailoring single-cycle near-field in a tunnel junction with carrier-envelope phase-controlled terahertz electric fields", *Nano Lett.* **18**, pp. 5198-5204 (2018).
- ・ H. Mashiko, Y. Chisuga, K. Oguri, H. Masuda, I. Katayama, J. Takeda and H. Gotoh, "Multi-petahertz electron interference in Cr:Al₂O₃ solid-state material", *Nature Commun.* **9**, 1468 (2018).

【研究期間と研究経費】

令和2年度～6年度 146,600千円

【ホームページ等】

<http://www.ultrafast.ynu.ac.jp/jun@ynu.ac.jp>