

科学研究費助成事業（特別推進研究）公表用資料 〔令和2（2020）年度 研究進捗評価用〕

平成29年度採択分
令和2年3月31日現在

サブサイクル時間分解走査トンネル顕微鏡法の開発と応用

Development of sub-cycle time-resolved STM and its Applications

課題番号：17H06088

重川 秀実（SHIGEKAWA, HIDEMI）

筑波大学・数理物質系・教授



研究の概要： CEP(carrier envelope phase)と呼ばれる超短パルス光内の電場の位相の直接制御など、量子光学の先端技術を走査トンネル顕微鏡法（STM）と組み合わせることにより、サブサイクル(電場一周期)の時間分解能で対象とする現象を制御してSTM（原子レベル）の空間分解能でプローブすることを可能にする極限計測法を開発し、新たな科学領域の開拓を試みる

研究分野：数物系科学

キーワード：走査トンネル顕微鏡法、CEP制御、サブサイクル分光、極限計測

1. 研究開始当初の背景

科学技術の進歩により、現在、多くの領域で開発の限界が現れはじめ、単にこれまでの方法の延長では今後の展開が難しい状況が生じている。こうした事態を打開するには、新しい物性（機能）を見出し活用することが一番であるが、あわせて、新しい発想に基づく新しい工学の概念を導入する事が必要不可欠である。例えば、半導体素子の応答や、生体内での信号伝達、化学反応など、多くの興味深い、また重要な現象は、数十ナノメートル～分子スケールで、また、数十ピコ秒～フェムト秒領域で展開されている。最近、こうした半導体・量子構造や生体材料・単一分子の物性（機能）を融合することで、次世代の新機能材料、新機能デバイスを創製・開発する試みが進められているが、これら対象では、単一原子レベルの欠陥や微小領域での構造によるダイナミックスの僅かな揺らぎがマクロな現象に大きな影響を与えるだけでなく、物性（得られる機能）そのものを選択・支配する要因になる。実際、半導体素子はそのサイズが10nm程度で制限される領域に達し、特性を制御するために導入されたドーパントの空間分布や界面の揺らぎが、得られる機能に直接影響を及ぼす段階に至っている。電荷に加えスピンを利用した新しい特性を持つ機能材料・素子の開発も盛んであるが、局所的な秩序や構造の揺らぎはスピンの生成・消滅、相

相互作用（量子相関）などにも大きな影響を与え、機能を制御する上で重要な役割を担う。しかし、解析は主にマクロ（平均的）な情報を基礎とされてきた。

2. 研究の目的

原子レベルの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡（STM）とフェムト秒領域の時間分解能を持つ超短パルスレーザー技術を融合することにより、（1）STM（原子レベル）の空間分解能で局所構造や電子状態を確認しながら、（2）フェムト秒（光学的パルス幅）の時間分解能で分光を行うことが可能な新しい分光技術の研究を進め、世界に先駆けて同手法の開発に成功すると共に局所スピンの超高速ダイナミックスの計測などを可能にしてきた。本研究では、こうした技術を基盤とし、CEP(carrier envelope phase)と呼ばれるパルス光内の電場の位相の直接制御など、量子光学の先端技術を導入することにより、サブサイクル(電場一周期)の時間分解能で対象とする現象を制御してSTMの空間分解能でプローブすることを可能にする極限計測法を開発し、新たな科学領域の開拓を試みる。

3. 研究の方法

開発を進めてきた時間分解STMは、光学的ポンブプローブ法をSTMと融合することにより誕生したが、パルス光には数周期の電場が含まれ、その位相も制御されてはいなかった。本研究では、新光源や位相制御

などの先端技術を導入し、励起光の位相変調など微弱信号を取り出す為の新たな工夫を凝らすことにより、サブサイクルのダイナミクスを STM の分解能で顕わにする測定法を実現する。STM 探針直下の電場は 10^6 倍程の大きさに増幅される為、STM で周囲の環境を確認しながら、目的とする局所構造を選択的に励起できる。従って、モノサイクルのパルス光を用い CEP 制御することで、局所物性を励起電場で制御しながらダイナミクスをサブサイクルでとらえる仕組みが可能になる。

4. これまでの成果

サブサイクル時間分解走査 STM として、(1) 1 パルス CEP 制御ポンププローブ分光法 (THz-STM)、(2) 2 パルス CEP 制御ポンププローブ分光法、の二つのシステムと、(3) 多探針時間分解分光法、を主な柱とし、付随する手法を含めた新しい技術開発を目的として進めてきた。

(1) では、探針増幅近接場波形を実験的に求める方法を開発し、よく制御された電場を用いた精密な時間分解測定を可能にした。相転移や二次元層構造物質を対象として時間分解測定を行い、光強度依存性等の結果を用いて原子レベルの欠陥の影響等物理的な評価が可能になったことを示した(文献1)。また、信号強度を二桁高めることで微弱な信号を S/N 比良く計測することを可能にし、分子層膜に注入した電子の(サブ)ピコ秒領域の動的な過程を可視化することにも初めて成功した。更に、CEP を用いた変調法を開発し、励起状態の電流-電圧 ($I-V$) 曲線を安定して測定する事で、局所電子状態のダイナミクスをエネルギー領域で調べる事も可能になった。(2) では、測定環境の揺らぎを抑える高機能クリーンブース (24 ± 0.5 の温度制御) 中に新しい OPCPA レーザー系を設置して、1ps、30fs のモノサイクル THz パルス光列の形成・制御を可能にする新しいシステムの構築を終えた。(1) で述べた方法で探針増強近接場を評価し、中赤外で数千倍の増幅が行われていることを確認した。また、20fs 程度の時間分解測定が可能で電場が他に無い安定性を示すことも確認した(文献2)。

(3) では、多探針時間分解システムの開発し、遷移金属カルコゲナイド(TMD)単層ヘテロ構造を用いて、探針や光照射の場所に依存したキャリアダイナミクスの測定に初めて成功した(文献3)。

その他、時間分解 STM が通常の光学的ポンププローブ法では測定にかからない表面特有の現象を計測可能な表面敏感な手法である事を示したり(文献4)、外部トリガー型レーザーを利用して時間分解を簡便に行うことが可能な新しいシステムを開発し(文献5)、現在製品化を目指して共同開発を進めている。

5. 今後の主な計画

項目4の(1)については新しい STM と組み合わせることで更にドリフトを押さえた測定を可能とし、分子間での電荷移動を直接とらえる実験等を進める。また、上記、励起状態の $I-V$ 測定に新しく開発した CEP 変調の仕組みを用いる事で、微弱な信号を更に安定して測定することを可能にし、これら技術をあわせることで、励起状態の詳細な解析、可視化等、本プロジェクトの目的を更に推進する。

(2) については、安定した2パルスを作成して同一軸上に乗せることに成功し、外部から制御可能な光学系を持つ新しい STM との融合を進めているが、本手法を用いて、励起光で状態を制御された状態でのサブサイクル時間分解測定を実現する。

(3) については、世界初のシステムを実現したが、その後も、測定法の影響等、基盤技術の検討が進み、現在、TMD ヘテロ構造を用いたバンド構造のダイナミクス測定の準備を進めている。多探針であることから、制御した動作環境下での時間分解測定が可能で、実デバイス構造の解析なども睨み成果を出す。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む) 主な論文

1. K. Yoshioka et al., Subcycle mid-infrared coherent transients at 4 MHz repetition rate applicable to light-wave-driven scanning tunneling microscopy, *Optics Letters*, 44, 21, 5350-5353 (2019).
2. S. Yoshida et al., Sub-cycle transient scanning tunneling spectroscopy with visualization of enhanced terahertz near-field, *ACS Photonics*, 6, 1356-1364(2019). 表紙掲載。
3. H. Mogi et al., Development of laser-combined scanning multiprobe spectroscopy and application to analysis of $WSe_2/MoSe_2$ in-plane heterostructure, *Appl. Phys. Express*, 12, 045002 (2019).
4. Z. h. Wang et al., Surface-mediated effect on electron spin dynamics probed by optical-pump-probe scanning tunneling microscopy, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 21, 7256 (2019). 表紙掲載。
5. H. Mogi et al., Externally triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscopy, *Appl. Phys. Express*, 12, 025005 (2019).

授賞：2019年春紫綬褒章受章

映画配信：2018年APS, March Meetingにおいて、学会で撮影した動画を会場、主要ホテルで、放映

7. ホームページ等

<http://dora.bk.tsukuba.ac.jp/>

<https://dora.bk.tsukuba.ac.jp/eqmqbs/index.html>

hidemi@ims.tsukuba.ac.jp