

**研究成果最適展開支援プログラム A-STEP**  
**企業主導フェーズ NexTEP-B タイプ**  
**事後評価報告書**

- 開発実施企業 : 株式会社ユニソク
- 代表研究者 : 国立大学法人筑波大学 数理物理系  
教授 重川 秀実
- 研究開発課題名 : 時間・スピン分解走査マルチプローブ顕微鏡

## 1. 開発の目的

材料分野で新機能を創出するためには、対象となる試料やデバイス内の局所構造におけるダイナミクスを理解が鍵となる。本開発は、走査プローブ顕微鏡 (SPM) の技術に光ポンプ・プローブ法を組み合わせることにより、高い空間分解能をもつ走査マルチプローブ顕微鏡に時間分解能を付加したものを製品化し、この要請に応えることを目的とした。

## 2. 開発の概要

本開発では、優れた空間分解能を持つ SPM に、5 ピコ秒の時間分解能機能と、0.5 nm の空間分解能を持つスピン分解機能を付加した。加えて、独立した操作が可能な 4 本のプローブを搭載し、すべてのプローブで上記機能が実現できることを目標とした。

上記の時間分解能を実現するためには、5 ピコ秒以下の時間精度でパルス状ポンプ光とプローブ光を対象に照射する必要がある。従来は、大掛かりな光学実験用定盤を用いて光回路を構成する必要があり、再現性に優れた観察や評価結果を得ることが難しいとされていた。また、光ポンプ・プローブ SPM 法の技術的課題として、パルス光照射による探針の熱膨張が挙げられる。対策として、ポンプ光、プローブ光間の時間差(遅延時間)を変化させることにより、試料・探針間に照射される平均的な光強度を一定に保ち、熱膨張の影響を抑制できることが知られていた。しかし、従来の遅延時間制御方法では、機械的振動や遅延時間設定範囲の制約などの欠点があった。

本開発ではこの問題を解決するために、遅延時間を電氣的・デジタル的に制御することによりこの問題を解決した。さらにこの手法では機械的な変更を行うことなく遅延時間測定範囲を広くできる。またプローブ光とポンプ光強度が変化しないので、熱膨張が探針に与える影響を抑えることができ高精度な測定が可能になった。加えて遅延時間の変調振幅を大きくすることができるので、検出される信号強度が従来と比較して数十倍程度まで増大する。これによって S/N 比の大幅な改善と測定時間の大幅な短縮に成功した。

また、試料に照射するポンプ光とプローブ光に円偏光を用いることで、試料のスピンを選択的に励起し、そのダイナミクスを測定できることが知られている。本開発では前述の時間分解測定を行うための光路に、ポツケルセルと 1/4 波長板を導入することで、右回りおよび左回り円偏光を作り出した。また遅延時間制御システムの電子回路に変更を加え、ポンプ光とプローブ光の偏向を交互に切り替えることで円偏光変調を実現した。これによって、試料表面でスピン励起に対する応答時間が場所によって異なる様子を SPM の空間分解そのままに捉えることが可能になった。

ベースとなる SPM は、開発企業が販売する超高真空低温 SPM システムを利用した。探針を用いて試料表面上を走査する SPM システムでは測定に長時間の観察を必要とするが、時間とともに視野と集光点が動いてしまうドリフトの問題を抱えていた。そこで、剛性を上げた SPM ヘッドを新たに設計し、XYZ 方向に移動可能な集光レンズを SPM ステージに搭載することで試料表面における光照射位置の安定化を図った。これにより、レーザー焦点位置と試料、探針の相対位置が 16 時間経過後も変化しない状況が実現され、長時間の時間分解測定に対応できるようになった。

本開発のマルチプローブ顕微鏡の空間分解能、時間分解能、スピン分解能について適切なサンプルを用意し性能の確認を行った。評価においては、開発企業が保有する光源や代表研究者の保有するフェムト秒レーザー光源を使用した。

最初に、高配向性熱分解グラファイト（原子間隔 0.24 nm）を試料に用いて空間分解能を確認した。本装置に搭載された 4 本のプローブすべてで対象の原子配列を分離確認することが可能であった。これによって基本となる SPM が 0.5 nm の空間分解能を実現していることが確認できた。

次に、標準試料として GaAs 単結晶（n 型）を使用し光ポンプ・プローブ SPM 測定を行い、時間分解スペクトルを取得した。このスペクトルには GaAs 試料のバルクと表面それぞれのキャリアダイナミクスに起因する減衰時間の違いが現れるはずである。測定結果はふたつの指数関数の和でフィッティングされ、減衰時間は 4 ナノ秒、120 ナノ秒と見積もられた。これは先行研究の結果と一致し 4 ナノ秒の減衰時間を検出できたことから時間分解能として 5 ナノ秒の性能を満たしていると判断できた。

併せて同社の SPM システムを用いて、代表研究者の保有するフェムト秒レーザーを光源として測定した結果 2.4 ピコ秒の減衰時間を検出できたことから、時間分解能として 5 ピコ秒の性能を満たしていると判断できた。

最後にスピン分解能は、本開発で使用したピコ秒レーザー（波長 532 nm, 2.33 eV）に最も適した、単層 WS<sub>2</sub> を試料に用いて確認した。円偏光変調によるトンネル電流信号が試料表面に 10 nm 程度の空間スケールで不均一に分布し、かつ、遅延時間に依存して変化する様子をとらえることに成功した。

以上の結果から、開発の目標はすべて達成されていることが確認された。

### 3. 総合所見

優れた空間分解能を持つ SPM に光ポンプ・プローブ法を組み込んで、試料内局所構造のダイナミクスに係る研究は今までも進められてきた。しかしながら、前述のようにシステムを研究者自らが構築しなくてはならず、この測定技術に係る専門的な知識を持つ限られた研究者の成果が発表されるにとどまっていた。

本開発では、代表研究者の画期的な測定原理を制御系や操作機構に組み込み、平易な操作と安定した測定を可能とした。合わせて検証においては目標を上回る成果を得ている。これによって幅広い分野の研究者による活用の広がりを期待できる結果を得た。

また、開発企業や代表研究者らが起点となって、広範な研究者へのアプローチが進められており、幅広い分野で本新技術が活用されることが期待できる。本開発成果は事業化に至る可能性がある、と評価する。

以上