

「物質現象の解明と応用に資する新しい計測・分析基盤技術」

平成 16 年度採択研究代表者

重川 秀実

(筑波大学大学院数理物質科学研究科 教授)

「フェムト秒時間分解走査プローブ顕微鏡技術の開拓と極限計測」

## 1. 研究実施の概要

本プロジェクトは、走査プローブ顕微鏡法の優れた空間分解能と超短パルス光・ポンププローブ法のエネルギー及び時間領域での高い選択性・分解能を融合することにより、時空間両領域での極限的な計測・制御・物性実験が可能な装置・手法を開発し、ナノスケール領域での新たな科学技術の展開をはかることを目的とするものである。

2つの手法は異なる領域で局限化されたものであるため、両者を融合するには個々の技術を単独で用いる際には隠されていた問題点が顕わになり、多くの試みにもかかわらずこれまで実現することはかなわなかった。我々は、「ポンププローブに用いる2つの超短パルス光の間の遅延時間を制御する新しい仕組み」を導入することでシステムの S/N 比を大幅に改善し、両先端技術を融合して微弱な時間分解トンネル信号の計測及びその空間マッピングが可能な新しい顕微鏡法を開発した。

「新しい顕微鏡法」では、サブピコ秒からマイクロ秒に渡る広い範囲の光励起過程を扱うことが可能で様々な試料を対象にすることができる。あわせて、信号の絶対値が得られ、長時間の計測においても光軸のずれが小さいなど、正確な情報を得る精密な計測が可能となった。

現在、更なる改良と解析法の確立を目指して整備を進めるとともに、ナノスケールの構造を持つ試料を対象としてデータを蓄積中である。

## 2. 研究実施内容

研究のねらい

原子レベルの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡法(STM)とフェムト秒の時間分解能を持つ超短パルス光を組み合わせることにより、時間と空間の両領域において極限的な分解能を有する新しい顕微鏡を開発する。

・研究実施方法

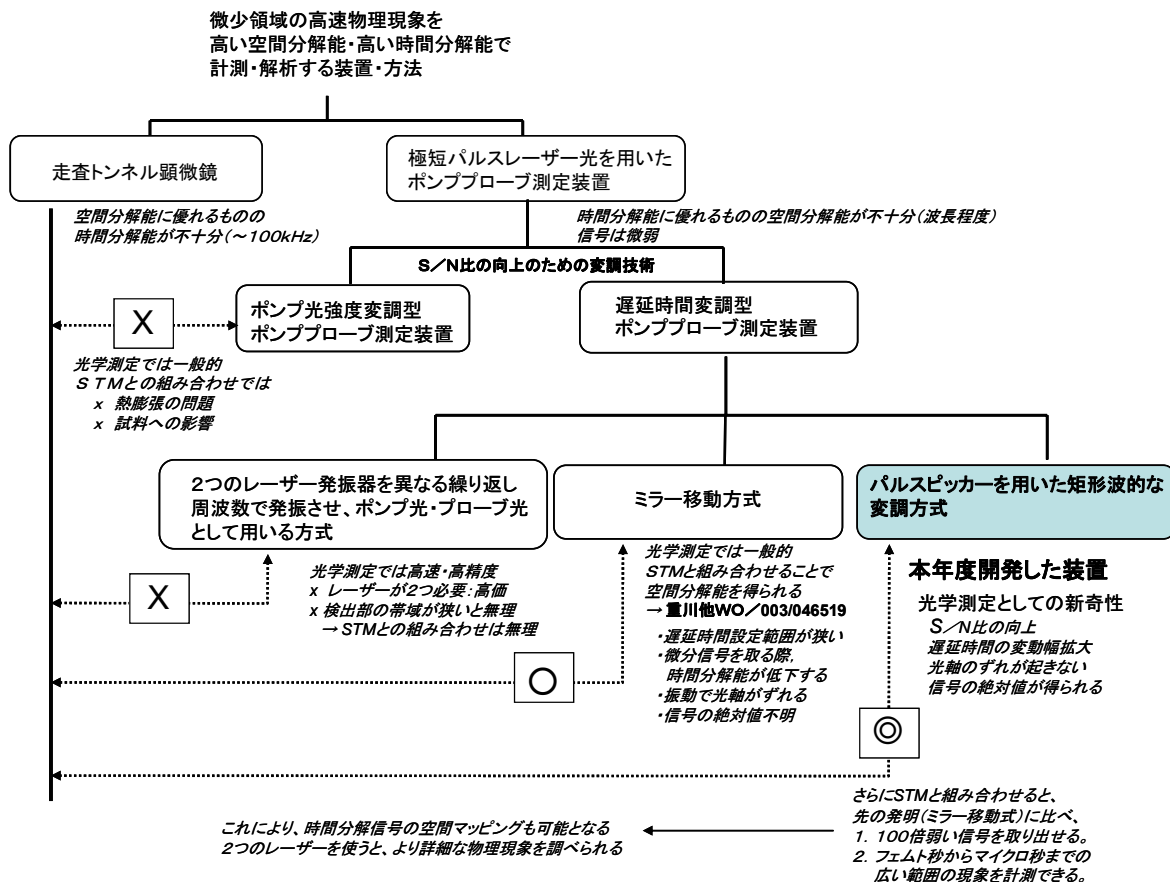
原理としては、STM の探針直下を短パルス光で照射し、光学的なポンププローブ光と同様の仕組みを用いて励起し STM によりトンネル電流の変化を計測する。それぞれのシステムを整備した後、両者を組み合わせる際、各先端技術のレベルを保ちながら新しい仕組みを作り上げることが必要不可欠で、(1)熱膨張回避、(2)光軸の安定化、(3)S/N 比の改善など、逐次、結果をフィードバックしながら、新しい考えを導入し開発を進めることになる。

・当初の研究計画(全体研究計画書)に対する現在の研究進捗状況

ほぼ、当初の計画に沿って進めてきたが、本年度得られた結果は、装置の性能として、予想をはるかに上回るものとなった。図1に、これまでに進めてきた開発の流れを示す。本年度の成果は色を変えて表示した部分になる。

まず、両技術を融合させるためには微弱なトンネル電流を信号として取り出すことが必要不可欠で、S/N 比を向上させるためにロックイン検出を行う。例として3つの方法をあげた。まず、通常の「ポンプ強度変調型・ポンププローブ測定法」は、熱膨張の問題などが生じるため STM との組み合わせは不可能である(図中左上側の X 印)。

こうした問題点を取り除くために、我々は、光強度を変化させない、「遅延時間変調型・ポ



「ポンププローブ測定法」を導入し、まず、光路差を機械的に制御する「ミラー移動方式」を用いて STM との融合を実現した。光軸を自動調整する機構や、長い光路差を取り出す工夫を行い、GaNA s 試料からのサブ ps ー数 100ps 領域の光励起キャリアダイナミクスをトンネル電流として取り出すことに成功した(図1中○印、及び、図2)。しかし、測定には熟練を要し、また、信号強度としても多様な試料を計測するには十分な性能とは言えなかった。

その間、他の研究グループにより2つのレーザー発信器を異なる繰り返し周波数で発信させポンププローブ光として用いる方法が開発されたが、検出部の帯域が狭いと困難で、これも STM との組み合わせは無理である(図中左下側の X 印)。

そこで、こうした点を改良することを本年度の目的とした。追加資金を利用し、2つのパルス光を自由に選択して広い範囲にわたり遅延時間を設定して計測することが可能な方法を導入し開発を行った結果、当初の予定を超えて、安定した信号を短時間で計測することが可能で、フェムト秒からマイクロ秒にわたる広範囲の過渡応答を空間マッピングし解析することができる「新しい顕微鏡」の基礎を確立することに成功した(図中◎印)。

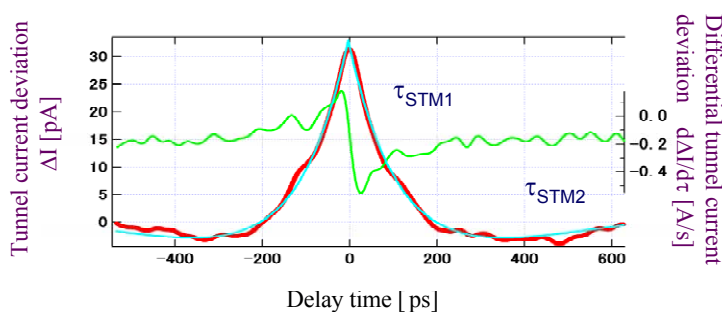


図2 GaNA s からの光 STM 時間分解トンネル電流信号の例。

緑色の線は遅延時間変調(ロックイン計測)により得られる元の微分信号。赤色の線は元のデータ(緑色)を積分して得られるもので遅延時間に対し光励起キャリアが緩和する様子を表す。青色の線はフィッティング曲線。

$$\Delta I = \sum_{i=1,2} \Delta I_i + \text{const.} = \sum A_i \exp(-\tau_{\text{STM}_i}) + \text{const.}$$

で表される2つの緩和成分からなっており、その値は、光学的なポンププローブ法により求められる光励起キャリアの寿命とよく対応する。

試料に関しては、将来的には有機材料も対象とすることで適用範囲が格段に広がることが期待される。そこで、有機材料の試料に対しても時間分解計測への準備として、電氣的・力学的な特性の計測及び構造制御などの基礎的な研究を進めた。

### 3. 研究実施体制

#### (1) 「重川」グループ

①研究分担グループ長：重川 秀実（筑波大学大学院数理物質科学研究科 教授）

#### ②研究項目

- ・超高速プローブ計測技術の開発

#### (2) 「長村」グループ

①研究分担グループ長：長村 俊彦（(株)ユニソク開発研究所 部長）

#### ②研究項目

- ・マルチ計測光励起プローブシステムの開発

### 4. 研究成果の発表等

#### (1) 論文発表(原著論文)

##### 国内

○Probing nanoscale world by laser-combined scanning tunneling microscopy.

Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, O. Takeuchi and H. Shigekawa

The Japan society of Applied Physics, Thin film and surface physics division, News Letter, No.128 (2006), in Japanese.

○Light-Modulated Scanning Tunneling Spectroscopy on the analysis of nanoscale band structure and carrier dynamics

S. Yoshida, Y. Kanitani, O. Takeuchi and H. Shigekawa

Hyomen Kagaku, Journal of the Surface Science Society of Japan, 28, 2, 111-114 (2007) in Japanese

##### 国際

○Nanoscale Dynamics Probed by Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy

H. Shigekawa, S. Yoshida, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada, H. Kondo and H. Oigawa

Thin solid film, in print.

○Microscopic Basis for the Mechanism of Carrier Dynamics in an Operating p-n Junction Examined by using Light-Modulated Scanning Tunneling Spectroscopy

S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi and H. Shigekawa

Phys. Rev. Lett. 98, 026802 (2007)

SELECTED IN Focus.

17 January 2007

SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology

January 22, 2007, Volume 15, Issue 3

- Ultrafast photoinduced carrier dynamics in GaNAs probed using femtosecond time-resolved scanning tunnelling microscopy  
Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, A. Taninaka, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
Nanotechnology 18,044028 (2007)
- Anisotropic free-electron-like dispersions and standing waves realized in self-assembled monolayers of glycine on Cu(100)  
K. Kanazawa, Y. Saino, Y. Konishi, S. Yoshida, A. Taninaka, A. Okada, M. Berthe, N. Kobayashi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
J. Am. Chem. Soc. 129(4), 740 - 741(2007); (Communication)
- Bond Fluctuation of S/Se Anchoring Observed in Single-Molecule Conductance Measurements using the Point Contact Method with Scanning Tunneling Microscopy  
S. Yasuda, S. Yoshida, J. Sasaki, Y. Okutsu, T. Nakamura, A. Taninaka, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
J. Am. Chem. Soc. 128(24), 7746-7747(2006)
- Multiple stacking of self-assembled InAs quantum dots embedded by GaNAs strain compensating layers  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa and Y. Okada  
J. Appl. Phys. 100, 083110 (2006)  
SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
November 6, 2006, Volume 14, Issue 19
- Long wavelength InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs strain-compensating layers  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa and Y. Okada  
Physica E 32, 77-78 (2006)
- Dynamic-Force Spectroscopy Measurement with Precise Force Control Using Atomic-Force Microscopy Probe  
O. Takeuchi, T. Miyakoshi, A. Taninaka, K. Tanaka, D. Cho, M. Fujita, S. Yasuda, S. P. Jarvis and H. Shigekawa  
J. Appl. Phys. 100, 074315(2006)  
SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
October 23, 2006, Volume 14, Issue 17
- Single Molecular Anatomy of Solvophobic Effects in Host-Guest Interactions Based on Surface Tension Using Atomic Force Microscopy  
S. Yasuda, I. Suzuki, K. Shinohara and H. Shigekawa  
Phys. Rev. Lett. 96, 228303 (2006)  
SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology

June 19, 2006, Volume 13, Issue 24

- Strain compensation effect on stacked InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs layers

Ryuji Oshima, Takayuki Hashimoto, Hidemi Shigekawa, and Yoshitaka Okada

MRS symposium Proc., 0891 (2006) EE03-01

- Fabrication of multi-layer self-assembled InAs quantum dots for high-efficiency solar cells

Ryuji Oshima, Hiroyuki Komiyama, Takayuki Hashimoto, Hidemi Shigekawa, and Yoshitaka Okada

Proc. of 4th 2006 IEEE 4th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion, 158 (2006)

## (2) 特許出願

平成 18年度特許出願:1 件 (CREST 研究期間累積件数:1 件)