

「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

ナノテクノロジーを利用して、例えば、次世代の新機能・超高速デバイスを創製・開発することが期待され盛んに進められている。しかし、こうした試みを実現するためには、(1) ナノスケールで量子構造を制御・構築する技術を確認するとともに、(2) 作製された構造・機能をシステムの中で正しく解析・評価する手法の確立が必要不可欠である。

本プロジェクトでは、走査プローブ顕微鏡 (S PM) の優れた空間的分解能と光励起による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、時空両領域での極限的な制御・物性実験が可能な装置・手法を開発、提供し、ナノスケール領域での科学技術の展開をはかることを目的としている。

これまでに、光照射により誘起されるサブピコ秒領域での微弱なトンネル電流を計測する手法・技術開発をはじめとし、相補的な情報を得ることを目的として、動作下での半導体素子を対象とした局所電子構造の光誘起変調空間マッピングや、高感度 STM 発光計測システムの開発に成功している。

更に、特定準位の選択的励起を可能にする光照射が可能で、探針位置設定を精密に行える装置の作製を進めるとともに、自動光軸補正、長い遅延時間計測が可能なシステムを開発してきたが、現在、これら結果を基に、より精密で安定した動作が可能な新しい仕組みを考案し、計画を遂行している。新手法の実現により、プロジェクトの計画が格段に進み、多大な成果が得られるものと期待している。

2. 研究実施内容

研究の目的

ナノテクノロジーを利用して、次世代の新機能・超高速デバイスを創製・開発することが期待されている。しかし、こうした試みを実現するためには、(1) ナノスケールで量子構造を制御・構築する技術を確認するとともに、(2) 作製された構造・機能をシステムの中で正しく解析・評価する手法の確立が必要不可欠である。

本プロジェクトは、走査プローブ顕微鏡の優れた空間分解能と光励起によるエネルギー

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ものである。

走査トンネル顕微鏡 (STM) 及びその関連技術は、実空間で原子レベルの空間分解能を持ち、ナノスケールの科学研究を遂行する上で欠かすことの出来ない手法であるが、外部回路の典型的な測定バンド幅は高々数 10kHz 程度であるため、高速現象の測定を得意としない。一方、光を用いた測定法では、広領域に渡る分光が可能であるばかりでなく、フェムト秒パルスレーザーを用いたポンププローブ法などの超高速測定の手法が確立されている。しかし一般に、これらの手法は波長程度 (～サブ μm オーダ) の空間的な分解能しか持たない。そこで、両先端技術を融合することにより、時空両領域で極限的な分解能を持ち、新たな物性研究を可能にする、ナノスケールでの新しい極限計測・制御技術を開拓するが、乗り越えなくてはならない多くの課題が存在する。

プロジェクト発足以来、経過は順調であるが、今後の計画を含め、以下に詳細を述べる。

進捗状況の具体例：

1. 波長可変計測システムの導入：対象とする試料の特定準位を選択的に励起することで、詳細な解析を可能とした。
2. 遅延時間スケールの改良：緩和過程には、寿命の長い成分も含まれる。幅広い緩和時間測定を可能にすることで、こうした成分を個別に評価することを可能にし、それにより、早い緩和過程の詳細な解析を実現できることが明らかになった。
3. 光軸自動補正機構の構築：STMとの融合においては、探針直下の局所領域を精密に光照射することが必要で、わずかな光軸のずれが測定を不可能にする。こうした問題を解決するために、自動補正の仕組みを構築した。
4. 計測・解析ソフトの開発・整備：微弱なトンネル電流を信号として取り出し、得られた結果を電子状態の計算とあわせて評価する計測・解析システムを構築した。
5. 空間分解能を示すための試料の検討・作製・評価：局所計測の有用性を示すことを目的とし、分子計測技術開等その他、アドバイザーの協力の下、超構造を持つ試料を作製するとともに、試料の局所特性評価や最適な計測条件を確認するためのシステム (光変調トンネル分光法、高感度STM発光分光法) を開発した。

現状で明らかになった解決すべき点の例：

- (1) ポンプパルスとプローブパルスは1つのレーザーパルスを分割することで作成する。
 - (ア) ポンプパルスとプローブパルスの波長を別々に変化させることができないため、試料内部で起こる高速反応過程に対するエネルギー分解測定を行うことが難しい。
- (2) 遅延時間をミラー位置の機械的移動で変化させている。

(ア) 光軸とミラー移動軸とを精密に一致させる必要がある。

- ① 光軸のアラインメントに多大な労力と時間を要する。
- ② 光軸の微小なミスアラインメントが測定に悪影響を及ぼす。

(イ) ミラー位置の移動距離が制限される。

- ① 遅延時間の設定可能範囲を1 ns程度(30 cm程度)より大きくできないため、長い時間スケールで起こる現象を測定することができない。
- ② 遅延時間変調幅を100 ps程度(3 cm程度)より大きくできないため、長い時間スケールで起こる現象を測定することができない。

(ウ) ミラー位置の移動速度が制限される。

- ① 遅延時間変調周波数を20 Hz以上にすることができないため、レーザー強度のふらつき、機械的振動によるトンネル電流のノイズが測定のスN比を悪化させる。
- ② ミラー位置の機械的移動による光学台の振動がSTMに悪影響を及ぼす。

(3) 遅延時間変調による測定結果は時間分解トンネル電流の微係数にあたる。

(ア) 信号の絶対値を知ることができない。

問題点の解決に向けて：

以上の結果、及び、現状での課題を検討し、これら問題点を解決するために時間分解光励起システムや計測システムについて、以下の例に示すような新しい試みを進めている。

- (1) 新しく考案した「2レーザー励起とパルス列を間引く方法を組み合わせ、パルス間隔に変調をかける」手法を導入することにより、ノイズレベルが格段に低減され、緩和過程の強度変化を絶対値で求めることが可能で、また、広い範囲の寿命に渡って過渡応答を測定することが可能なシステムの構築。本システムの導入により、先に挙げた問題点の多くが一度に解決される。
- (2) 光照射の効率的な調整や空間分解能を示すための探針の位置設定、同時計測などが可能となるマルチ計測システムの開発。

3. 研究実施体制

重川グループ

- ① 研究分担グループ長：重川 秀実(筑波大学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

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. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

(1) 論文（原著論文）発表

- O. Takeuchi, M. Aoyama, H. Kondo, Y. Terada, A. Taninaka and H. Shigekawa, “Nonlinear Dependences in Pulse-Pair-Excited Scanning Tunneling Microscopy” , Jpn. J. Appl. Phys. 45, 3B, 1926-1930(2006).
- Y. Terada, H. Shigekawa, Y. Suwa, S. Heike, M. Fujimori and T. Hashizume, “Electronic structures of individual poly(3-hexylthiophene) nanowires on hydrogen-terminated Si(100) surfaces” , Jpn. J. Appl. Phys. 45, 3B, 1956-1961(2006).
- H. Shigekawa, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada H. Kondo and H. Oigawa, “How to realize ultimate spatial and temporal resolutions by laser combined scanning tunneling microscopy?” , MRS Fall meeting, Symposium R Proceedings, Invited (MRS Online Library & Print)
- S. Yoshida, J. Kikuchi, Y. Kanitani, O. Takeuchi, H. Oigawa and H. Shigekawa, “Tip-induced band bending and its effect on local barrier height measurement studied by light modulated scanning tunneling spectroscopy” , e-journal, surf. sci. & technol. Vol.4, 192-196(2006)
- Y. Sainoo, Y. Kim, T. Okawa, T. Komeda, H. Shigekawa, M. Kawai, “Excitation of molecular vibration modes with inelastic scanning tunneling microscopy processes: Examination through action spectra of cis-2-butene on Pd(110)” , Phys. Rev. Lett. (95), 246102(2005)
- H. Shigekawa, O. Takeuchi and M. Aoyama, “Development of femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy for nanoscale science and technology” , Science and Technology of Advanced Materials, 6, 582-588(2005)
- Y. Ohrai, T. Gouzu, S. Yoshida, O. Takeuchi, S. Ijima and H. Shigekawa, “Atomic force microscopy on Imogolite, aluminosilicate nanotube, adsorbed on Au(111) surface” , Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 44, No. 7B, pp. 5397-5399(2005)
- O. Takeuchi, M. Aoyama and H. Shigekawa, “Analysis of Time-Resolved Tunnel Current Signal in Sub-Picosecond Range Observed by Shaken-Pulse-Pair-Excited Scanning Tunneling Microscopy” , Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 44, No. 7B, pp. 5354-5357(2005)

(2) 特許出願

平成 17 年度特許出願件数：1 件（CREST 研究期間累積件数：1 件）