

令和 2 年 6 月 30 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H05982

研究課題名(和文)テラヘルツ時間分解STMの開発

研究課題名(英文)Development of time resolved THz-STM

研究代表者

吉田 昭二(Yoshida, Shoji)

筑波大学・数理工質系・准教授

研究者番号：90447227

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では高い時空間分解能を有する新しい時間分解顕微鏡THz-STMの開発を行った。高強度かつ高繰り返し周波数のTHzパルス発生技術と超高真空低温STM装置を組み合わせることでサブピコ秒の時間分解能、かつ原子分解能を両立した時間分解計測が可能になった。開発した装置を様々な試料表面の光誘起ダイナミクスの計測に応用し、二次元層状物質表面のキャリアダイナミクス、光誘起相転移をサブピコ秒時間分解能で計測することに成功し、有機薄膜中の電子輸送ダイナミクスのイメージングに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した時間分解THz-STMを用いて、超高速領域での光励起キャリアダイナミクスや電子状態の変化を原子レベルで捉えることに成功した。サブps時間分解能、原子分解能を両立した時間分解計測による表面ダイナミクスのイメージングが可能となり、今後様々な試料の光応答・ダイナミクスを原子・分子のスケールで解明できるようになると期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have developed a novel time-resolved microscopy - THz-STM. We have achieved time-resolved measurement with extremely high signal to noise ratio by using a highly intense and high repetition rate THz pulse, which was generated using high power femtosecond pulse laser.

We have applied the technique to probe the ultrafast dynamics of various materials. For example, we have succeeded in measuring ultrafast carrier relaxation and ultrafast metal-insulator transition in two dimensional layered materials, and we have captured electron motion in an organic semiconductor. We have demonstrated sub-ps time resolution and atomic spatial resolution of the method from the above results.

研究分野：走査プローブ顕微鏡

キーワード：走査プローブ顕微鏡 テラヘルツ 超高速分光 表面科学

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

物質中で起こる物理現象の多くはフェムト秒～ピコ秒の非常に早い時間スケールで変化することから、これまでフェムト秒レーザーを用いた時間分解分光法は物性研究のツールとして広範に活用されてきた。さらに近年では、THz 光パルス発生技術の発展により、分子振動などの低エネルギーの素励起過程の観察に加え、物質を強い THz 電界で瞬間的に揺さぶることで、新たな非平衡状態を生み出し、そのダイナミクスを調べることも可能になってきた。しかし、一般的にこのような光学的手法は空間的には波長レベルの分解能しか持たず、空間的に平均化された情報しか与えないため、ナノ材料や単一分子、空間的に不均一な物質に応用するには新たな仕組みの導入した高空間分解能の計測技術が必要不可欠となる。

2. 研究の目的

以上のような背景からこれまでフェムト秒パルスレーザーと走査トンネル顕微鏡 (STM) を組み合わせた時間分解 STM の開発が進められてきた。しかし従来手法では測定対象が半導体に限られてしまうこと、信号が微弱であることなどから広範な測定対象に対して測定を行うことは難しかった。そこで本研究では THz パルスを用いた従来とは異なる検出原理に基づく時間分解 STM 計測法の開発を行い、様々な試料表面において光励起ダイナミクスの計測を行った。

3. 研究の方法

本研究にて開発した時間分解 THz-STM の概要を図 1 に示す。STM の探針と試料の間に THz パルスを照射すると、STM 探針がアンテナとして働くことにより探針先端に増強された THz パルス近接場が生成する。この THz パルス近接場によってトンネル接合に強い電場を印可することで、パルス的にトンネル電流 (THz 電流) が流れる。この THz 電流をプローブとして用いることで試料の瞬間的な状態を計測することが可能となる。光によって誘起される超高速ダイナミクスを計測するため、本研究では図 1 に示すように光パルスをポンプ光として用いる時間分解計測システムを開発する。時間分解 THz-STM に適した THz パルス光源の開発のために産業用フェムト秒パルスレーザー (最大出力 40W、繰り返し周波数 1-50 MHz、パルス幅 309 fs) を導入し、LiNbO₃ を用いた高効率 THz パルス発生光学系を構築した。STM は既存の低温超高真空 STM を使用した。

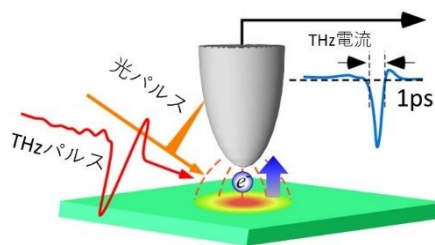


図 1 時間分解 THz-STM 装置の概略図

4. 研究成果

(1) THz 近接場波形計測法の開発

STM 探針に THz パルスを照射することで得られる THz 近接場の電場波形は、入射 THz パルスと異なることが THz-SNOM などの先行研究により指摘されていたが、これまで定量評価する方法が開発されていなかった。THz-STM の測定結果を正しく解釈するために探針近接場波形を知ることは必要不可欠と考えられる。そこで本研究では THz-STM の基盤技術として、探針先端 THz 近接場波形の計測法の開発を行った。開発した手法では、図 2a に示すように探針先端からレーザー光により誘起される光電子生成量が同時に照射される THz 電場に比例する特性を利用して THz 電場波形を計測することができる。図 2 にその概要を示す。図 2d の入射 THz パルスの電場波形に対して、測定された探針先端の近接場波形 (図 2e) の形状は大きく異なっており、測定の重要性が指摘される。さらに光電子を用いた場合と同様の原理で光誘起トンネル電流を用いた THz 近接場波形の計測が可能であることを示した。

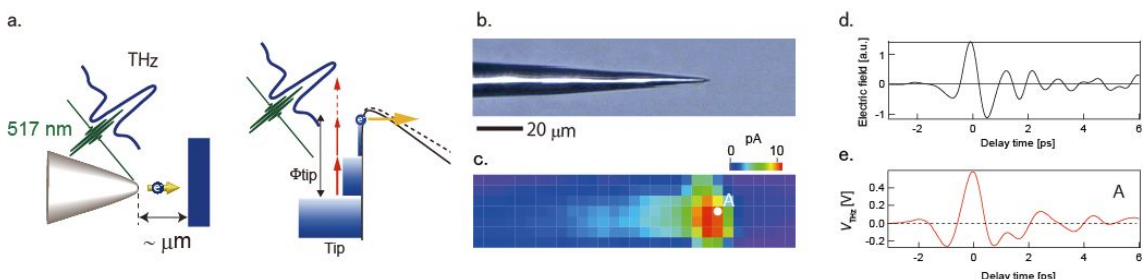


図 2 a. THz 近接場波形計測法の原理 b. 測定した STM 探針の光学顕微鏡写真と c. 測定によって得られた近接場強度の空間分布図。探針増強により探針先端において強い電場分布が得られる d. 探針に入射した THz パルスの電場波形 e. 探針先端 (図 c の A 点) の近接場波形

(2) 原子分解能 THz-STM イメージング

THz 電流を STM のフィードバック信号として用いて試料表面凹凸像のイメージングに成功した。例として図 3a に HOPG 表面、b に 1T-TiSe₂ 表面の THz-STM 像を示す。測定では通常のトンネル電圧をゼロに設定し、THz 誘起電流のみが流れる条件で測定を行った。通常の STM 観察と同様にして原子分解能で表面の原子配列が観測されることから時間分解 THz-STM が原子レベルの空間分解能を有することが確認された。

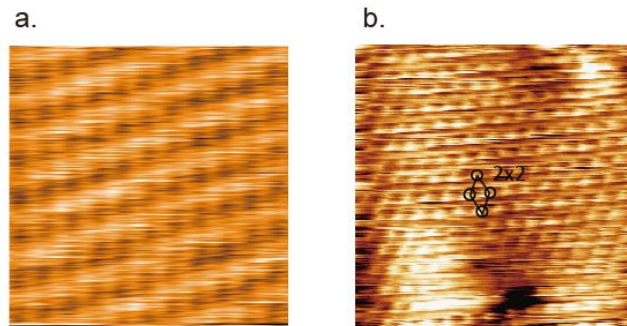


図 3 THz-STM 像 a. HOPG 表面と b. TiSe₂ 表面。2x2 周期の電荷密度波が観測される

(3) 時間分解 THz-STM を用いた光誘起ダイナミクスの計測

完成した測定装置を用いて、様々な試料に対して超高速ダイナミクス計測に展開した。1T-MoTe₂ 表面では赤外パルスにより励起した光キャリアの 100ps オーダーの再結合緩和を観測し、さらに 1T-TaS₂ 表面では光誘起金属-絶縁体転移により 10ps 以下の時間スケールで起こる電子状態変化を捉えることに成功した。また、C₆₀ 多層膜表面では C₆₀ の LUMO にパルス光により注入された電子が多層膜面内および面直方向に拡散する様子を観測することに成功した。図 4 に C₆₀ 多層膜表面での測定結果を示す。図は右下の STM 像の領域において光パルスと THz パルスの遅延時間を変えながら測定した THz 電流の空間分布を示す。THz 電流は THz パルスを照射した瞬間における C₆₀ 膜表面の電子密度を表しており、パルス照射直後の 2ps では電子は広い範囲に分布しているが、時間経過につれて最上層のテラス早く減少している一方で、下層のステップ端では電子が蓄積している様子が観測された。また、矢印で示した部分において観測される欠陥構造上では長時間電子がトラップされ続ける様子が観測された。このように本研究で開発した時間分解 THz-STM を用いて、光励起キャリアダイナミクスや電子状態の変化をナノスケールで捉えることが可能となった。

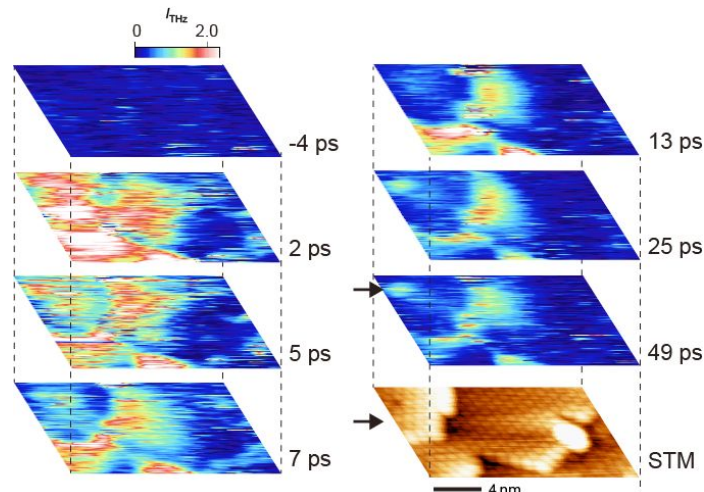


図 4 C₆₀ 多層膜/Au(111)表面上電子ダイナミクスのナノスケールイメージング結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Yoshioka Katsumasa, Igarashi Ippo, Yoshida Shoji, Arashida Yusuke, Katayama Ikufumi, Takeda Jun, Shigekawa Hidemi	4. 巻 44
2. 論文標題 Subcycle mid-infrared coherent transients at 4 MHz repetition rate applicable to light-wavedriven scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 5350 ~ 5350
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1034/OL.44.005350	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takeuchi Osamu, Mogi Hiroyuki, Wang Zi-Han, Yoon Cheul Hyun, Taninaka Atsushi, Yoshida Shoji, Shigekawa Hidemi	4. 巻 58
2. 論文標題 New delay-time modulation scheme for optical pump/probe scanning tunneling microscopy (OPP-STM) with minimized light-intensity modulation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 S11A12 ~ S11A12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab1255	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kobayashi Yu, Yoshida Shoji, Maruyama Mina, Mogi Hiroyuki, Murase Kota, Maniwa Yutaka, Takeuchi Osamu, Okada Susumu, Shigekawa Hidemi, Miyata Yasumitsu	4. 巻 13
2. 論文標題 Continuous Heteroepitaxy of Two-Dimensional Heterostructures Based on Layered Chalcogenides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 7527 ~ 7535
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.8b07991	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yoshida Shoji, Hirori Hideki, Tachizaki Takehiro, Yoshioka Katsumasa, Arashida Yusuke, Wang ZiHan, Sanari Yasuyuki, Takeuchi Osamu, Kanemitsu Yoshihiko, Shigekawa Hidemi	4. 巻 6
2. 論文標題 Subcycle Transient Scanning Tunneling Spectroscopy with Visualization of Enhanced Terahertz Near Field	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 1356 ~ 1364
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp Photonics.9b00266	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wang Zi-Han, Yoon Cheul-Hyun, Yoshida Shoji, Arashida Yusuke, Takeuchi Osamu, Ohno Yuzo, Shigekawa Hidemi	4. 巻 21
2. 論文標題 Surface-mediated spin dynamics probed by optical-pump probe scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 7256 ~ 7260
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CP07786J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hidemi Shigekawa and Shoji Yoshida	4. 巻 28
2. 論文標題 Laser-combined Scanning Tunneling Microscopy and Its Applications	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Association of Asia Pacific Physical Societies	6. 最初と最後の頁 9-18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.22661/AAPPSBL.2018.28.4.09	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroyuki Mogi, Wang Zihan, Kikuchi Ryusei, Cheul-hyun Yoon, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 12
2. 論文標題 Externally triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 25005
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijpharm.2007.07.014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Zi-han Wang, Cheul-hyun Yoon, Shoji Yoshida, Yusuke Arashida, Osamu Takeuchi, Yuzo Ohno and Hidemi Shigekawa	4. 巻 21
2. 論文標題 Surface-mediated effect on electron spin dynamics probed by optical-pump-probe scanning tunneling microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 7256-7260
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CP07786J	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroyuki Mogi, Zi-Han Wang, Takafumi Banba, Yuhei Takaguchi, Naohiko Endo, Shoji Yoshida, Atsushi Taninaka, Haruhiro Oigawa, Yasumitsu Miyata, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 12
2. 論文標題 Development of laser-combined scanning multiprobe spectroscopy and application to analysis of WSe ₂ /MoSe ₂ in-plane heterostructure	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Express	6. 最初と最後の頁 45002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1882-0786/ab09b9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Atsushi Taninaka, Shoji Yoshida, Yoshihiro Sugita, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 11
2. 論文標題 Evolution of local conductance pathways in a single-molecule junction studied by three-dimensional dynamic probe method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 5951-5959
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9NR00717B	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yoshihiro Sugita, Atsushi Taninaka, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 8
2. 論文標題 The effect of nitrogen lone-pair interaction on the conduction in a single-molecule junction with amine-Au bonding	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 5222
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-018-22893-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroyuki Mogi, Yu Kobayashi, Atsushi Taninaka, Ryuji Sakurada, Takahiro Takeuchi, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi, Yasumitsu Miyata, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 56
2. 論文標題 Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy on MoS ₂ Embedded Nanowire Formed in CVD-Grown Mo _{1-x} W _x S ₂ Alloy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 08LB06
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.56.08LB06	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Terunobu Nakanishi, Ryo Kitaura, Takazumi Kawai, Susumu Okada, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi, Hidemi Shigekawa, and Hisanori Shinohara	4. 巻 121
2. 論文標題 Modulation of the Local Density of States of Carbon Nanotubes by Encapsulation of Europium Nanowires As Observed by Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 18195-18201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b04047	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Atsushi Taninaka, Shoji Yoshida, Ken Kanazawa, Eiko Hayaki, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 2016
2. 論文標題 Attractive Interaction between Mn Atoms on GaAs(110) Surface Observed by Scanning Tunneling Microscopy	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 12118-12122
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C6NR02190E	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Hosomi, S. Yoshida, A. Taninaka, T. Yoshida, S. Takaishi, O. Takeuchi, M. Yamashita, and H. Shigekawa	4. 巻 55
2. 論文標題 Temperature dependence of Peierls-Hubbard Phase Transition in [Pd(cptn)2Br]Br2 Studied by Scanning Tunneling Microscopy	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 08NB16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.55.08NB16	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yu Kobayashi, Shoji Yoshida, Ryuji Sakurada, Kengo Takashima, Takahiro Yamamoto, Tetsuki Saito, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Yutaka Maniwa, Osamu Takeuchi, Hidemi Shigekawa, Yasumitsu Miyata	4. 巻 6
2. 論文標題 Modulation of electrical potential and conductivity in an atomic-layer semiconductor heterojunction	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 31223
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/srep31223	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Katsumasa Yoshioka, Ikufumi Katayama, Yasuo Minami, Masahiro Kitajima, Shoji Yoshida, Hidemi Shigekawa, and Jun Takeda	4. 巻 10
2. 論文標題 Real-space coherent manipulation of electrons in a single tunnel junction by single-cycle terahertz electric fields	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Nature Photonics	6. 最初と最後の頁 762-765
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/NPHOTON.2016.205	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shoji Yoshida, Atsushi Taninaka, Yoshihiro Sugita, Tomoki Katayama, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4. 巻 10
2. 論文標題 Revealing conformational dynamics in single-molecule junction by site- and angle-resolved dynamic probe method	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 11211-11218
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.6b06278	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 吉田昭二, 廣理英基, 立崎武弘, 嵐田雄介, 吉岡克将, 四ノ宮慶保, 上野寛輝, 五十嵐一步, 武内修, 重川秀実
2. 発表標題 時間分解THz-STMによる光誘起ダイナミクスの計測
3. 学会等名 日本表面真空学会学術講演会 (国際学会)
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 S. Yoshida, Y. Arashida, H. Hirori, T. Tachizaki, H. Ueno, I. Igarashi, Y. Shinomiya, O. Takeuchi, and H. Shigekawa
2. 発表標題 sub-ps Snapshot of Electron Dynamics in an Organic Thin Film Captured by THz-STM
3. 学会等名 27th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (国際学会)
4. 発表年 2019年 ~ 2020年

1. 発表者名 S. Yoshida, H. Hirori, T. Tachizaki, O. Takeuchi, H. Shigekawa
2. 発表標題 Ultrafast photo-induced dynamics probed by time resolved THz-STM
3. 学会等名 2018 International Conference on Nanoscience + Technology (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 S. Yoshida, T. Atsushi, Y. Sugita, O. Takeuchi, H. Shigekawa
2. 発表標題 Revealing the conformational dynamics in a single-molecule junction by site- and angle resolved dynamic probe method
3. 学会等名 2018 International Conference on Nanoscience + Technology (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Shoji Yoshida, Hideki Hirori, Takehiro Tachizaki, Satoki Nagai, Yoshiyasu Shinomiya, Hiroki Ueno, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa
2. 発表標題 Ultrafast dynamics at surfaces probed by time resolved THz-STM
3. 学会等名 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 吉田昭二
2. 発表標題 時間分解 THz-STM による光誘起ダイナミクスの計測
3. 学会等名 2018年日本真空表面学会学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 吉田昭二
2. 発表標題 時間分解STMの開発と光励起ダイナミクス計測
3. 学会等名 第2回日本表面科学会プローブ顕微鏡研究部会 合同シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉田昭二、吉村真太郎、竹内高広、本田周太、植田暁子、武内修、宮田耕充、重川秀実
2. 発表標題 MoS ₂ 単原子層中Reドーパントの局所電子状態のSTM/STS計測
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 廣理英基、吉田昭二、立崎武弘、長井聡紀、重川秀実
2. 発表標題 高強度THzパルスを用いた時間分解STMの開発
3. 学会等名 2017年 第64回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 吉田 昭二, Zi-han Wang, 武内 修, 重川 秀実
2. 発表標題 時間分解走査トンネル顕微鏡の開発と展望
3. 学会等名 2016年 第77回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----