## 科学研究費助成事業

研究成果報告書



令和 6 年 6 月 1 2 日現在

機関番号: 12102
研究種目: 基盤研究(A)(一般)
研究期間: 2020 ~ 2023
課題番号: 20H00341
研究課題名(和文)サブピコ秒電子ダイナミクスの原子スケールイメージング
研究課題名(英文)Atomic scale imaging of ultrafast electron dynamics
研究代表者
吉田 昭二(Yoshida, Shoji)
筑波大学・数理物質系・准教授
研究者委告:90447227

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 35,400,000 円

研究成果の概要(和文):時間分解テラヘルツSTM装置を大幅に改良することで、物質中に光励起されたキャリ アや電子のダイナミクスをサブピコ秒の時間分解能かつ原子~ナノスケールの空間分解能でイメージングするこ とを可能にした。改良した装置を用いて、C60有機薄膜中の電子ダイナミクスを高い時空間分解能でイメージン グし、電子が表面上のナノスケール領域で動き回る様子をピコ秒の時間スケールで動画として撮影することに成 功した。また、原子層半導体中の励起子のダイナミクスの観測などにも成功し、様々な物質中の超高速ダイナミ クスへと展開できることも示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 物質の機能を解明するためには、光や電場などを物質に加えた際の電子のふるまいを詳細に観察し理解すること が必要不可欠であり、物質中の電子のダイナミクスを高い時空間分解能で可視化する技術が求められている。 我々は、そのような要請を満たす装置として時間分解テラヘルツSTMを開発と改良を進め、サブナノメートルの 空間分解能かつサブピコ秒の時間分解能で物質中の電子ダイナミクスを実空間イメージングすることに成功して いる。単一欠陥が電子ダイナミクスに含影響を解析するなど他の手法・装置ではやすどいくし切合さな。 ことから高い独自性と学術的意義があり、様々な物質の新機能を開拓するために応用されていくと期待される。

研究成果の概要(英文):We have significantly improved the time-resolved terahertz STM system to enable imaging of the dynamics of photoexcited carriers and electrons in materials with sub-picosecond time resolution and atomic- to nanoscale spatial resolution. Using the improved system, we have successfully imaged electron dynamics in C60 organic thin films with high spatio-temporal resolution and captured movies of electrons moving around in nanoscale regions on the surface on a picosecond time scale. We also succeeded in observing the dynamics of excitons in two-dimensional layered semiconductors, and showed that this technique can be extended to ultrafast dynamics in various materials.

研究分野:薄膜・表面

キーワード: 走査プローブ顕微鏡

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1.研究開始当初の背景

表面・界面での電荷輸送は、太陽電池、光触媒などのエネルギー変換デバイスの基本であり、そのプロセス・ダイナミクスを解明することは非常に大切であるが、これまでの研究で用いられてきた光学分光手法では回折限界のため、原子、ナノスケールで界面での電荷輸送過程を直接観察するには空間分解能が不十分であった。一方で研究代表者はこれまで開発・改良を進めてきた時間分解テラヘルツ STM(THz-STM)を用いてすでに固体表面・界面の電荷輸送・緩和ダイナミクスをピコ秒、原子スケールで計測することに成功している。THz-STM では、テラヘルツパルスが照射されるおよそ1 ピコ秒(ps)の間にのみ流れる瞬間トンネル電流(THz 電流)を用いることで試料の状態を1ps の時間分解能で捉える手法であるが、これまでの測定では THz 電流信号が非常に微弱であるため、超高速ダイナミクスを空間イメージングするためにはさらなる高感度化が課題となっていた。

## 2.研究の目的

以上の背景から本研究では THz-STM の高感度化を進めることで時空間ダイナミクスのイメー ジングが可能な装置へと改良を進め、有機半導体薄膜や遷移金属ダイカルコゲナイドなどの原 子層半導体のキャリアダイナミクス計測を行うことで装置性能を実証する。

#### 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1a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、パルス幅309fs)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。



図1 a. 時間分解 THz-STM の模式図.b. THz パルスによってトンネル電圧が変調され( $V_{THz}$ )、THz 電流( $I_{THz}$ )が生じる。 $I_{THz}$ は THz パルス電場波形の非線形性に依存し、パルス光照射に誘起された  $I/V カーブの変化、すなわち電子状態の変化を捉えることが可能となる。<math>\overline{I}_{THz}$ は  $V_{THz}$ 同様、非対称 な波形を持つためトンネル電流プリアンプによって時間平均された後 ( $\overline{I}_{THz}$ )は波形そのものの 計測はできないが  $I_{THz}$ の大きさに比例した値として  $\overline{I}_{THz}$ が計測できる。

本研究では上記目的を達成するために以下の項目を実施した。

(1) THz-STM 装置の改良

THz-STM の高感度化に向けた光学系の改良

まずは S/N 比の大幅な向上を目的として上限 1MHz までであったフェムト秒レーザーの繰り返し 周波数を上限 50MHz まで拡張した。しかし実際に 50MHz まで繰り返し周波数を上げると、パルス エネルギーの低下により THz パルスの電場強度が著しく低下し、THz 電流を駆動できなくなって しまうという問題が発生した。そのため THz 電場強度の向上に向けて THz 発生系の光学系全体 の最適化を行った。具体的には下記の内容を実施した。

- ・ 図2に示すように光学系を2段構成にすることでTHz発生結晶からSTM 探針までの光路長を 極力短くしTHz強度のロスを抑えた。
- ・ THz 光学系をパージボックスで囲い,内部を乾燥空気(湿度 5%以下)で置換することにより空気中の水分による THz 吸収を抑えた。
- ・ 真空中に集光レンズを設置することで焦点距離を 100mm から 50mm に変更し STM 探針先端へ

の THz パルスの集光効率を上げた。

上記対策の結果、50MHz 繰り返し周波数においても,十分な THz 電場強度を得ることに成功し安 定な THz 電流を観測することが可能になった。



図2 改良した THz-STM 装置 写真。THz 発生結晶を含む主 要な光学系は2 段目に設置 し、自作パージボックスによ り内部を乾燥空気で満たす ことで吸収などによる THz パルス強度の損失を抑える。

光パラメトリック発振器の導入

光パラメトリック発振器と組み合わせることによって,試料の励起光源の波長を 1035nm のみの 構成から、650nm~1000nmの範囲で調整できるように改良した。

新しい低温 STM のインストール

STM 装置を旧式の物から新しい STM に入れ替え,立ち上げを行った。旧式では試料の冷却温度が 77K までに限られていたが 10K 程度まで冷却し実験を行うことが可能になった。さらに振動ノイ ズを低減するためにアクティブ除振台の導入も行い.より低ノイズで安定した計測を行うことが 可能となった。

## (2) 大面積単層剥離技術の開発

研究当初は作成する TMDC 単層のサイズが 100 µm 以下の非常に小さい試料しか作成できなかっ たため、単層に STM 探針をアプローチし計測すること自体が非常に難しいという問題があった。 そのため、本研究ではバルク結晶からそれとほぼ同等の大きさの単層試料を作成することが可 能な新しい単層剥離方法を考案した。図 3a に作製した単層 2H-MoTe2 試料の写真を示す。このよ うにバルク単結晶とほぼ同サイズの単層を機械剥離することができる。先行研究[Science.367, 903,2020]の方法を参考に改良を加えた結果、コンタミのほとんどない清浄な単層試料を作製す ることが可能となった。HOPG に再転写した MoS2 表面の STM 観察結果を図 3b に示すが原子レベ ルで平坦な表面が得られていることがわかる。また、目視で確認できるサイズの単層が得られる ことから、単層 2 枚に微小角をつけて積層したツイスト 2 層構造(図 3c)も容易に作製できるよ うになった。



図3.a. 機械剥離で得られた MoTe2 単層の写真。ウェハ中央部分の色の濃い領域に単層 MoTe2 が 転写されており 5mm 以上のサイズが得られている。b. 同様の方法で作製した単層 MoS2 表面の STM 像と断面プロファイル c. ツイスト2 層 WSe2の STM 像。3.4 度のツイスト角で積層すること によりモアレ超格子が形成されている。

### 4.研究成果

(1) C<sub>60</sub>薄膜表面の電子ダイナミクス計測 (ACS photon, 8, 315, 2021)

図4に結果の詳細を紹介する。図3a.観察表面のSTM像を示す。用いたポンプ光の波長は1035nm (1.2eV)なので  $C_{60}$ の HOMO-LUMO 遷移は励起されず、Au(111)表面からの電子注入のみが起こる。 b に STM 探針の場所を変えて測定した ፲<sub>祉</sub>の遅延時間依存性を示す。 ፲<sub>祉</sub>の大きさは STM 探針直 下の過剰電子密度に依存することから、b に示した Int の遅延時間依存性に見られる指数関数的 減衰は各測定箇所での電子密度がピコ秒時間スケールで減衰している様子を表している。特に、 ステップ上端のC点では非常に速い減衰が見られるのに対し、下端のF点では+5psまでは電子 密度が上昇し、その後他の場所より長い緩和を示す。次に遅延時間を固定して Inte をイメージン グした結果を図 4c に示す。それぞれの像の明るさは、光パルスが照射されてからの電子密度分 布を表しているため、各々の画像は左上から-4ps, 2ps, 5ps, 7ps,13ps, 25ps, 49ps後の電子 分布のスナップショットイメージとなる。 光パルス照射から 2ps 後では、 電子は像の左側に偏り つつも全体に広がっているが、時間経過に伴い最上層の電子密度が急速に減少する一方で、ステ ップ下端に電子の蓄積が起きていることがわかる。ステップ下端及び矢印で示した欠陥部分で は 49ps 経過後も電子が留まり続けていることが分かる。合わせて行った走査トンネル分光測定 より、ステップ下端では LUMO 準位がわずかではあるが局所的に低下しポテンシャル井戸が形成 されていることが分かった。この結果と合わせると図 3c はステップ下端のポテンシャル井戸に 電子が蓄積している様子を表していると考えられる。一方、最上層では図 4a の矢印で示した欠 陥部分では電子が同様にトラップされており A 点での電子が長寿命化していることがわかる。 この結果は実空間・原子スケールで電子移動ダイナミクスを捉えた初めての結果であり、表面ス テップや欠陥などの原子レベルの不均一性が電子の超高速ダイナミクスに強い影響を及ぼして いる様子を示している。

さらに単一欠陥周辺の電子ダイナミクスのイメージング結果を図5に示す。光パルスによりC<sub>60</sub> 薄膜中に注入した電子ははじめ(1ps 後)空間的に一様に分布している。30ps 以降はほぼ消失す るが、中央の単一欠陥部分では捕獲された電子が60ps以降も局在している。



図4 a. Au(111)表面上  $C_{60}$ 多 層膜(平均膜厚 4ML)の STM 像 b. aのA~I 点で測定した THz 電流の遅延時間依存性。c. 遅 延時間固定  $I_{THz}$  マッピング。 各遅延時間後の電子密度分布 に対応する。

図 5. C<sub>60</sub>薄膜表面における単 一欠陥周辺の電子ダイナミク スのイメージング結果。上部 の時系列カラーマップは電子 の濃度分布を表し、最下層は 計測領域の STM 像。

(2) 原子層半導体の光励起ダイナミクス計測

Au 表面に MoS<sup>2</sup> 単層を転写すると一部単原子層が Au 表面から離れて浮いている状態(中空サス ペンド構造)が点在することが確認された。中空サスペンド構造は 10~100nm サイズでドーム状 に膨らんだ構造を持つことから強い歪みが単層に加わり中空部分のバンドギャップは縮小する。 そのため光照射により生成した励起子はドーム内に閉じ込められると期待され、実際にフォト ルミネッセンス測定でサスペンド部分からの強い発光が確認されている。 その励起子の空間ダ イナミクスを直接観測することを目的として中空サスペンド構造と周辺で THz-STM による時間 分解計測を行った。517nm の可視パルス光を用いて MoS<sup>2</sup>を励起し、その励起状態を THz パルスに より生じる THz 電流によりプローブしたその結果、中空サスペンド構造上で指数関数減衰が観測 され数 ps と数 100ps の 2 つの時定数をもつことが明らかになった。同様のサスペンド構造上で 時間分解発光計測を行ったところ同様に数 100ps の緩和時間が得られており THz-STM の結果は 励起子寿命と対応することが分かった。また Au 表面と接した MoS<sup>2</sup> 単層上では信号が観測されて おらず励起子がクエンチされていることと対応しており、THz-STM を用いて局所領域での励起子 ダイナミクスを計測できることを示した。

#### 5.主な発表論文等 〔雑誌論文〕 計13件(うち査読付論文 13件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件) 4.巻 1.著者名 Mogi Hiroyuki, Wang Zi-han, Kuroda Ibuki, Takaguchi Yuhei, Miyata Yasumitsu, Taninaka Atsushi, 61 Arashida Yusuke, Yoshida Shoji, Takeuchi Osamu, Shigekawa Hidemi 5.発行年 2. 論文標題 Laser-combined multiprobe microscopy and its application to the materials with atomic layer 2022年 thickness 3. 雑誌名 6.最初と最後の頁 Japanese Journal of Applied Physics SL1011 ~ SL1011 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 査読の有無 10.35848/1347-4065/ac6a3c 有 オープンアクセス 国際共著 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 1. 著者名 4.巻 Arashida Yusuke, Umeda Naoki, Mogi Hiroyuki, Ishikawa Masashi, Hatanaka Akira, Takeuchi Osamu, 15 Yoshida Shoji, Shigekawa Hidemi 5 . 発行年 2.論文標題 Phase-controllable multi-laser system with coaxially combined near-infrared and subcycle mid-2022年 infrared and THz pulsed beams 3.雑誌名 6.最初と最後の頁 Applied Physics Express 092006 ~ 092006 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 査読の有無 10.35848/1882-0786/ac88b6 有 オープンアクセス 国際共著 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 1. 著者名 4.巻 Yoshida Takefumi, Takaishi Shinya, Guerin Laurent, Kojima Tatsuhiro, Ohtsu Hiroyoshi, Kawano 61 Masaki, Miyamoto Tatsuya, Okamoto Hiroshi, Kato Kenichi, Takata Masaki, Hosomi Yuka, Yoshida Shoji, Shigekawa Hidemi, Tanaka Hisaaki, Kuroda Shin-ichi, Iguchi Hiroaki, Breedlove Brian K., Li Zhao-Yang, Yamashita Masahiro 5 . 発行年 2. 論文標題 Hydrogen Bonding Propagated Phase Separation in Quasi-Epitaxial Single Crystals: A Pd?Br 2022年 Molecular Insulator

 

 3.雑誌名 Inorganic Chemistry
 6.最初と最後の頁 14067~14074

 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.2c02078
 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	4.巻
Arashida Yusuke, Mogi Hiroyuki, Ishikawa Masashi, Igarashi Ippo, Hatanaka Akira, Umeda Naoki,	9
Peng Jinbo, Yoshida Shoji, Takeuchi Osamu, Shigekawa Hidemi	
2.論文標題	5.発行年
Subcycle Mid-Infrared Electric-Field-Driven Scanning Tunneling Microscopy with a Time	2022年
Resolution Higher Than 30 fs	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
ACS Photonics	3156 ~ 3164
掲載論文のD01(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acsphotonics.2c00995	有
オープンアクセス	国際共著
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	-

1.著者名 Mogi Hiroyuki、Arashida Yusuke、Kikuchi Ryusei、Mizuno Ryosuke、Wakabayashi Jun、Wada Naoki、 Mivata Yasumitsu、Taninaka Atsushi、Yoshida Shoii、Takeuchi Osamu、Shigekawa Hidemi	4.巻 6
2.論文標題 Ultrafast nanoscale exciton dynamics via laser-combined scanning tunneling microscopy in atomically thin materials	5 . 発行年 2022年
3. 雑誌名	6 . 最初と最後の頁
npj 2D Materials and Applications	72
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1038/s41699-022-00345-1	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 Yajima Wataru、Arashida Yusuke、Nishimori Ryota、Emoto Yuga、Yamamoto Yuki、Kawasaki Kohei、 Saida Yuri、Jeong Samuel、Akada Keishi、Takubo Kou、Shigekawa Hidemi、Fujita Jun-ichi、 Koshihara Shin-ya、Yoshida Shoji、Hada Masaki	4.巻 10
2 . 論文標題	5 . 発行年
Streaking of a Picosecond Electron Pulse with a Weak Terahertz Pulse	2022年
3.雑誌名	6 . 最初と最後の頁
ACS Photonics	116~124
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acsphotonics.2c01304	有
オープンアクセス	国際共著
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	
1.著者名 Iwaya Katsuya、Yokota Munenori、Hanada Hiroaki、Mogi Hiroyuki、Yoshida Shoji、Takeuchi Osamu、 Miyatake Yutaka、Shigekawa Hidemi	4.巻 13
2.論文標題 Externally-triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscopy with a time resolution of tens-picosecond	5 . 発行年 2023年
3 . 雑誌名	6.最初と最後の貝
Scientific Reports	818
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1038/s41598-023-27383-z	有
オープンアクセス	国際共著
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	-
1.著者名 Masaki Hada, Satoshi Ohmura, Yuki Yamamoto, Yoshiya Kishibe, Wataru Yajima, Ryo Shikata, Keishi Akada, Shoji Yoshida, Jun-ichi Fujita, Shin-ya Koshihara, Yuta Nishina	4.巻 183
2 . 論文標題	5 . 発行年
Tracking the light-driven layer stacking of graphene oxide	2021年
3.雑誌名	6 .最初と最後の頁
Carbon	612-619
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1016/j.carbon.2021.07.058	有
オープンアクセス	国際共著

-

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

1.著者名 Yusuke Arashida, Atsushi Taninaka, Takahiro Ochiai, Hiroyuki Mogi, Shoji Yoshida, Masamichi Yoshimura, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shiqekawa	4.巻 14
2.論文標題 Low-frequency multiplex CARS microscopy with a high-repetition near-infrared supercontinuum laser	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 AppI. Phys. Express	6.最初と最後の頁 122006
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac39b1	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 Yuya Murai, Shaochun Zhang, Takato Hotta, Zheng Liu, Takahiko Endo, Hiroshi Shimizu, Yasumitsu Miyata, Toshifumi Irisawa, Yanlin Gao, Mina Maruyama, Susumu Okada, Hiroyuki Mogi, Tomohiro Sato, Shoji Yoshida, Hidemi Shigekawa, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Canton-Vitoria Ruben, Ryo Kitaura	4 . 巻 15
2 . 論文標題 A Versatile Post-Doping Towards Two-Dimensional Semiconductors	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 ACS Nano	6.最初と最後の頁 19225-19232
「根裁会立のDOL(ごごねルオブジェクト沖別ス)	本きの方無
将載調及のDOT (デジタルオフジェクト識別子) 10.1021/acsnano.1c04584	_ 直
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   吉田昭二,嵐田雄介,茂木裕幸,武内 修,重川秀実 	4 .
2.論文標題 最先端光技術と SPM を利用した ダイナミクス計測の現状と展開	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 表面と真空	6.最初と最後の頁 66-71
	本誌の左仰
掲載論文のDOT(テシタルオフシェクト識別子) 10.1380/vss.65.66	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, Yusuke Arashida, Hideki Hirori, Takehiro Tachizaki, Atsushi Taninaka, Hiroki Ueno, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa	4.巻 8
2.論文標題 Terahertz scanning tunneling microscopy for visualizing ultrafast electron motion in nanoscale potential variations	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 ACS Photonics	6 . 最初と最後の頁 315-323
掲載論文のDOL(デジタルオブジェクト識別子)	
	杏詰の右毎
10.1021/acsphotonics. 0c01572	査読の有無 有
10.1021/acsphotonics. 0c01572 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)	査読の有無 有 国際共著 -

1.著者名	4.巻
Kanta Asakawa, Dang-il Kim, Shotaro Yaguchi, Mikito Tsujii, Katsumasa Yoshioka, Yusuke	117
Arashida, Shoji Yoshida, Hidemi Shigekawa, Masashi Kuwahara, Ikufumi Katayama and Jun Takeda	
2.論文標題	5 . 発行年
Nanoscale phase change on Ge2Sb2Te5 thin films induced by optical near fields with	2020年
photoassisted scanning tunneling microscope	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Appl. Phys. Lett.	211102
掲載論文のD01(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1063/5.0032573	有
オープンアクセス	国際共著
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	-
	-

### 〔学会発表〕 計43件(うち招待講演 7件/うち国際学会 16件)

1 . 発表者名 Osamu Takeuchi, Taichi Kogure, Yoshihiro Fujimaki, Hiroyuki Mogi, Yusuke Arashida, Shoji Yoshida, and Hidemi Shigekawa

2.発表標題

Light-assisted Timeresolved Scanning Tunneling Spectroscopy

3.学会等名

22nd international vacuum congress (国際学会)

4 . 発表年

2022年

## 1.発表者名

Hiroyuki Mogi, Zi-han Wang, Ibuki Kuroda, Yuhei Takaguchi, Yasumitsu Miyata, Atsushi Taninaka, Yusuke Arashida, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa

### 2 . 発表標題

Analysis of Trap-related Conduction Dynamics in Atomically Thin Materials by an Optically Excited Multiprobe Setup

## 3.学会等名

22nd international vacuum congress (国際学会)

4 . 発表年 2022年

#### 1.発表者名

Yusuke Arashida, Hiroyuki Mogi, Masashi Ishikawa, Ippo Igarashi, Akira Hatanaka, Naoki Umeda, Jinbo Peng, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa

#### 2.発表標題

Development of field-driven time-resolved STM using subcycle mid-infrared pulses

#### 3 . 学会等名

22nd international vacuum congress (国際学会)

4.発表年 2022年

R. Wakabayashi, H. Mogi, Y. Arashida, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa

## 2.発表標題

Probing local potential dynamics by ultrafast photoelectron pulse emitted from STM probe

### 3.学会等名

22nd international vacuum congress(国際学会)

### 4.発表年 2022年

. .

### 1.発表者名

Naoki Umeda, Yusuke Arashida, Masashi Ishikawa, Akira Hatanaka, Hiroyuki Mogi, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa

### 2.発表標題

Combining high repetition subcycle MIR and THz pulses to study field-driven ultrafast phenomena

#### 3 . 学会等名

22nd international vacuum congress(国際学会)

### 4.発表年 2022年

## 1.発表者名

Katsuya Iwaya, Munenori Yokota, Hiroaki Hanada, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi, Hidemi Shigekawa, Yutaka Miyatake

2.発表標題

Externally triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscope with time resolution of approximately 70 ps

## 3 . 学会等名

APSSS-4(国際学会)

4.発表年 2022年

1.発表者名

武内 修,木榑 太一,藤巻 慶大,茂木 裕幸, 嵐田 雄介,谷中 淳,吉田 昭二,重川 秀実

#### 2.発表標題

時間分解走査トンネル分光法の開発

### 3 . 学会等名

2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会

4 . 発表年 2022年

茂木 裕幸 , 若林 凜, 嵐田 雄介, 吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実

## 2.発表標題

STM探針光電子放出を利用した局所ポテンシャルダイナミクス評価

3.学会等名2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2022年

1.発表者名

矢嶋 渉, 嵐田 雄介, 西森 亮太, 江本 悠河, 山本 祐揮, 川崎 康平, 齋田 友梨, 鄭 サムエル, 赤田 圭史, 田久保 耕, 重川 秀実, 藤 田 淳一, 腰原 伸也, 吉田 昭二, 羽田 真毅

2.発表標題

テラヘルツ波による極短パルス電子線のパルス幅計測

3 . 学会等名

2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2022年

### 1.発表者名

Wataru Yajima, Yusuke Arashida, Ryota Nishimori, Yuga Emoto, Yuki Yamamoto, Kohei Kawasaki, Yuri Saida, Samuel Jeong, Keishi Akada, Kou Takubo, Hidemi Shigekawa, Jun-ichi Fujita, Shin-ya Koshihara, Shoji Yoshida and Masaki Hada

2.発表標題

Development of a terahertz pump and electron diffraction probe setup for the dynamics measurements of liquid crystals

3 . 学会等名

OLC SWS 2022(国際学会)

4.発表年 2022年

1.発表者名

吉田 昭二

2.発表標題

光とSTMを組み合わせた顕微鏡ーナノの世界を観る目を研ぎ澄ますー

3 . 学会等名

2023年度日本表面真空学会九州支部特別講演会(招待講演)

4 . 発表年 2023年

髙松 暉, 嵐田 雄介, 畑中 陽, 梅田 直輝, 茂木 裕幸, 武内 修, 吉田 昭二, 重川 秀実

2.発表標題

時間分解 STM のための中赤外パルスの高強度化

3.学会等名 第22回レーザー学会東京支部研究会

4.発表年 2023年

 1.発表者名 清水 歩,茂木 裕幸,嵐田 雄介,吉田 昭二,武内 修,重川 秀実

2 . 発表標題

第二次高調波発生による二次元半導体材料の高精度結晶方位評価

3 . 学会等名

第22回レーザー学会東京支部研究会

4.発表年 2023年

1.発表者名

梅田 直輝,嵐田 雄介, 茂木 裕幸,石川 雅士,畑中 陽, 武内 修,吉田昭二,重川 秀実

2.発表標題

近赤外及びサブサイクルの中赤外・THzパルスを同軸に組み合わせた位相制御可能なマルチレーザーシステム

3.学会等名 第22回レーザー学会東京支部研究会

4.発表年 2023年

1.発表者名

嵐田 雄介,畑中 陽,梅田 直樹,高松 暉,茂木 裕幸,吉田 昭二,武内 修,重川 秀実

2.発表標題

第22回レーザー学会東京支部研究会

3 . 学会等名

中赤外レーザー融合走査型トンネル顕微鏡と物質科学(招待講演)

4.発表年 2023年

吉田昭二

## 2.発表標題

時間分解THz-STMを用いたサブピコ秒電子ダイナミクスのイメージング

3 . 学会等名

ナノプローブテクノロジー第167委員会 第97回研究会(招待講演)

4.発表年 2021年

1.発表者名

武内 修、藤巻 慶大、木榑 太一、茂木 裕幸、嵐田 雄介、吉田 昭二、谷中 淳、重川 秀実

2.発表標題

100 ps を超える時間分解能を持つ光ポンプ・バイアス電圧プローブ走査トンネル顕微鏡

3 . 学会等名

2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2021年

## 1.発表者名

茂木 裕幸, 水野 良祐, 和田 尚樹, 宮田 耕充, 嵐田 雄介, 谷中 淳, 吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実

2.発表標題

時間分解多探針STMを用いた単層WS2/WSe2面内ヘテロ接合の局所励起子ダイナミクス評価

3 . 学会等名

2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2021年

1.発表者名

山本 祐揮, 江本 悠河, 嵐田 雄介, 岸部 義也, 赤田 圭史, 羽田 真毅, 吉田 昭二, 藤田 淳一

#### 2.発表標題

表面キャリアダイナミクスの観察に向けたフェムト秒レーザーを用いた超高速走査型電子顕微鏡の開発

## 3 . 学会等名

2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4 . 発表年 2021年

石川 雅士、嵐田 雄介、五十嵐 一歩、畑中 陽、裕幸 茂木、吉田 昭二、武内 修、重川 秀実

## 2.発表標題

中赤外STMにおけるトンネル電流の超高速変調の観測

3.学会等名
 2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2021年

1.発表者名

佐藤 智拓、伊藤 圭汰、茂木 裕幸、嵐田 雄介、吉田 昭二、武内 修、宮田 耕充、重川 秀実

2 . 発表標題

大面積TMDC単層の作製と表面構造のSTM解析

3 . 学会等名

2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2021年

1.発表者名

畑中 陽、嵐田 雄介、石川 雅士、茂木 裕幸、吉田 昭二、武内 修、重川 秀実

2.発表標題

STM探針先端における中赤外パルスの熱影響計測

3.学会等名

2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2021年

1.発表者名

Yuki Yamamoto, Satoshi Ohmura, Yoshiya Kishibe, Wataru Yajima, Ryo Shikata, Keishi Akada, Shoji Yoshida, Jun-ichi Fujita, Shin-ya Koshihara, Yuta Nishina, Masaki Hada

2.発表標題

Ultrafast Time-Resolved Electron Diffraction Capturing Layer Stacking Dynamics of Graphene Oxide

3 . 学会等名

OLC 2021(国際学会)

4 . 発表年

2021年

水野 良祐,茂木 裕幸,和田 尚樹,宮田 耕充,嵐田 雄介,吉田 昭二,武内 修,重川 秀実

## 2.発表標題

時間分解多探針STMを用いた単層WS2の局所励起子ダイナミクス評価

3 . 学会等名

2021年日本表面真空学会学術講演会

4.発表年 2021年

## 1.発表者名

O. Takeuchi , Y. Fujimaki , T. Kogure , H. Mogi , Y. Arashida , S. Yoshida , A. Taninaka and H. Shigekawa

2.発表標題

100 ps time resolution realized with optical-pump bias-voltage-probe scanning tunneling microscopy

#### 3 . 学会等名

The 9th International Symposium on Surface Science(国際学会)

### 4.発表年 2021年

#### 1.発表者名

Hiroyuki Mogi, Ryosuke Mizuno, Naoki Wada, Yasumitsu Miyata, Yusuke Arashida, Atsushi Taninaka, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa

#### 2 . 発表標題

Revealing Local Exciton Dynamics on a Monolayer WS2 probed by Time-resolved Multiprobe STM

## 3 . 学会等名

The 9th International Symposium on Surface Science(国際学会)

4.発表年 2021年

### 1.発表者名

Y. Arashida , M. Ishikawa , A. Hatanaka , N. Umeda , H. Mogi , S. Yoshida , O. Takeuchi and H. Shigekawa

## 2 . 発表標題

Field-driven ultrafast STM using sub-cycle mid-infrared pulses

## 3 . 学会等名

The 9th International Symposium on Surface Science(国際学会)

4 . 発表年 2021年

Osamu Takeuchi, Yoshihiro Fujimaki, Taichi Kogure, Hiroyuki Mogi, Yusuke Arashida, Shoji Yoshida, Atsushi Taninaka, and Hidemi Shigekawa

### 2.発表標題

Development of Optical-pump Biasvoltage-probe Time-resolved STM

### 3 . 学会等名

29th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(国際学会)

## 4. 発表年

# 2021年

1.発表者名

Tomohiro Sato, Keita Ito, Jinbo Peng, Hiroyuki Mogi, Osamu Takeuchi, Shoji Yoshida, Yasumitsu Miyata, Hidemi Shigekawa

### 2.発表標題

Fabrication of large-area twisted bilayer TMDC moire superlattice

#### 3 . 学会等名

29th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(国際学会)

### 4.発表年 2021年

#### 1.発表者名

A. Hatanaka, Y. Arashida, M. Ishikawa, H. Mogi, S. Yoshida, O. Takeuchi, and H. Shigekawa

## 2.発表標題

Time-resolved measurement of tunneling current on MoTe2 using multi-terahertz STM

## 3 . 学会等名

29th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(国際学会)

#### 4.発表年 2021年

#### 1.発表者名 Naoki Umeda

Naoki Umeda, Yusuke Arashida, Masashi Ishikawa, Akira Hatanaka, Hiroyuki Mogi, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa

### 2.発表標題

Combining high repetition subcycle MIR and THz pulses to study field-driven phenomena in condensed matters

## 3 . 学会等名

29th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(国際学会)

4. <u>発</u>表年 2021年

梅田 直輝, 嵐田 雄介, 石川 雅士, 畑中 陽, 茂木 裕幸, 吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実

## 2.発表標題

THz 励起-時間分解STM に向けた広帯域赤外パルス合波技術開発

3.学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会(国際学会)

4 . 発表年 2022年

1.発表者名 吉田昭二

2.発表標題

時間分解STMを用いた二次元原子層状物質中励起子ダイナミクスのナノイメージング

3 . 学会等名

ナノプローブテクノロジー第167委員会 第101回研究会(招待講演)

4.発表年 2022年

1.発表者名 吉田昭二

2.発表標題

時間分解THz-STMを用いたサブピコ秒電子ダイナミクスのイメージング

3.学会等名

ナノプローブテクノロジー第167委員会 第97回研究会(招待講演)

4.発表年 2021年

1.発表者名

嵐田雄介,五十嵐一歩,石川雅士,吉田昭二,武内修,重川秀実

2.発表標題

光電子計測を用いた金属探針先端における中赤外近接場の波形計測

3 . 学会等名

2021年第68回応用物理学会春季学術講演会

4 . 発表年 2021年

茂木裕幸,汪子涵,高口裕平,遠藤尚彦,嵐田雄介,吉田昭二,谷中淳,大井川治宏,宮田耕充,武内修,重川秀実

2.発表標題

光励起多探針技術の開発と低次元半導体評価への応用

3.学会等名2021年第68回応用物理学会春季学術講演会

4 . 発表年 2021年

1.発表者名 吉田昭二

2.発表標題

時間分解テラヘルツSTMを用いた超高速電子ダイナミクスの実空間イメージング

3 . 学会等名

超高分解能顕微鏡法分科会2020年度研究会(招待講演)

4.発表年 2021年

1.発表者名 吉田昭二

2.発表標題 時間分解STMで見る超高速電子ダイナミクス

3 . 学会等名

2020年第67回春季学術講演会シンポジウム「遷移金属化合物薄膜の光機能の量子ビームによる探究」(招待講演)

4 . 発表年 2021年

1.発表者名

茂木 裕幸, 菊地 隆生, 水野 良祐, 和田 尚樹, 宮田 耕充, 吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実

2.発表標題

光励起 多探針STMを用いたWS2/WSe2面内ヘテロ接合デバイス評価

3 . 学会等名

2020年 第81回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2020年

Dang-il Kim, Kanta Asakawa, Shotaro Yaguchi, Mikito Tsujii, Keisuke Kaneshima, Katsumasa Yoshioka, Yusuke Arashida, Shoji Yoshida, Hidemi Shigekawa, Masashi Kuwahara, Ikufumi Katayama, and Jun Takeda

## 2.発表標題

Nanoscale phase transition of Ge2Sb2Te5 induced by locally enhanced laser fields at a tunnel junction

3.学会等名2020年 第81回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2020年

1.発表者名
 五十嵐一歩,石川 雅士,山本 祐揮,嵐田 雄介,吉田 昭二,武内 修,重川 秀実

2.発表標題

光励起中赤外STMによる時間分解トンネル電流測定

3.学会等名

2020年日本表面真空学会学術講演会

4.発表年 2020年

1.発表者名

石川 雅士, 五十嵐 一步, 山本 祐揮, 嵐田 雄介, 吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実

2.発表標題

STM探針先端における近接場サブサイクル中赤外波形の計測

3 . 学会等名

2020年日本表面真空学会学術講演会

4.発表年 2020年

1.発表者名

R. Kikuchi, H. Mogi, R. Mizuno, N. Wada, Y. Miyata, Y. Arashida, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa

2.発表標題

Nanoscale Spatially Resolved Observation of Photoexicited Carrier Dynamics in WS2/WSe2 Intralayer Heterostructure Device

3 . 学会等名

8th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy

4.発表年 2020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
--	---------------------------	-----------------------	----

## 7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

## 8.本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------