

1 サイクル以下の中赤外線駆動する走査型トンネル顕微鏡

Lightwave-driven scanning tunneling microscopy using subcycle mid-infrared pulses

○嵐田 雄介, 茂木 裕幸, 梅田 直輝, 高松 暉, 石川 雅士, 畑中 陽,

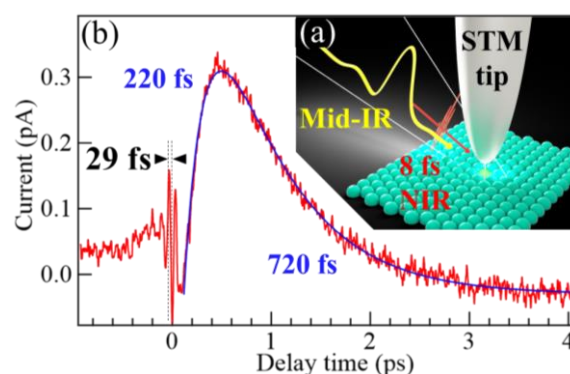
吉田 昭二, 武内 修, 重川 秀実 (筑波大数理)

Y. Arashida, H. Mogi, N. Umeda, A. Takamatsu, M. Ishikawa, A. Hatanaka, S. Yoshida, O. Takeuchi,
and H. Shigekawa (Univ. Tsukuba)

光と物質の相互作用による物性発現の基礎過程を理解するために、電子散乱の時間スケールおよび空間スケールにおいて電子状態の超高速変化を観察する実験的手法が望まれている。鋭い金属探針を用いた走査型トンネル顕微鏡 (STM) は原子スケールにおいて電子状態密度 DOS に感度のある方法であることが知られており、光のポンププローブ技術を適用した時間分解観察の試みが行われてきた [1-3]。2013 年に Cocker らが 1 サイクル未満のテラヘルツ (THz) 波を照射することで試料-探針間のバイアス電圧を瞬間的に変化させられることを実証し (THz-STM)、超高速領域における局所状態密度の解明に向けた新手法として注目を集めた [4,5]。THz-STM を用いることでこれまでに単分子のバウンド運動や半導体分子結晶のキャリアダイナミクスなどの観察が行われている [6,7]。このようにして THz-STM が持つナノスケールのダイナミクス解明に向けた有用性が示されてきたが、一方で THz 波を用いることでトンネル電流の測定時間分解能が 1 ps 程度に制限されてしまうことが課題とされてきた。本研究では 1 サイクル以下の中赤外パルスを用いることで時間分解能 29 fs の光波駆動 STM の開発し、層状半導体試料において非平衡電子系の示す性質の 1 つであるバンドギャップ収縮のダイナミクスの観察に成功したことを報告する [8]。

実験では光パラメトリックチャープパルス増幅器 OPCPA を基本光源として用いた。パルス幅 8.1 fs、波長範囲 680 nm から 940 nm の光パルスを繰り返し周波数 4 MHz、パルスエネルギー 1 μ J で出力する。この基本波を厚さ 30 μ m の GaSe 結晶に入射させることで光整流効果により 1 サイクル以下の広帯域中赤外パルス (MIR) を発生させた。この広帯域 MIR をダイヤモンド光学窓を通じて超高真空チャンバ内に導き、焦点距離 $f = 15$ mm の放物面鏡によって探針-試料 (トンネル接合) に集光することでトンネル電流の制御を行なった (図 1a)。試料としてバルクの層状半導体 2H-MoTe₂ を用いた。これはバンドギャップ ~ 1 eV 程度の半導体である。励起光には図 1a のようにレーザー基本波を用いることで 2H-MoTe₂ のバンド間遷移を誘起し、超高速領域における電子系のダイナミクスを観察した。

図 1b にトンネル電流の超高速変化を示す。励起直後である 0 fs 近傍では探針および試料に励起された hot electrons が MIR 電場によってトンネルすることで MIR 波形に近い振動周期 ~ 58 fs の変化が表れた。Peak-to-Peak の時間に直すと 29 fs であり、トンネル電流の時間変化の観察としては最も速い記録である。次に、Hot electrons の緩和と同時に 220 fs の時間スケールで電流量が増加し 720 fs で減衰する様子が確認された。縦軸の値が正に増加するのは探針から試料へ電子がトンネルしやすくなっていることを表しており、この結果により光励起された 2H-MoTe₂ において伝導帯の底 (CBM) が低エネルギーシフトしたことが示唆される。このようなバンドギャップ収縮は光励起直後の電子系による誘電遮蔽効果によって生じることが知られており [9]、その時間スケールも先行研究と一致した。この結果は中赤外光波駆動 STM が非平衡電子物性を観察可能であると実証しており、今後の展望として原子スケールでの光誘起相転移や化学反応の可視化などが期待される。



図, (a) MIR 光駆動 STM の概念図。 (b) 試料励起後における MIR 誘起トンネル電流の超高速変化。

参考文献

- 1) Y. Terada, *et al.*, *Nat. Photon.* 4, 869 (2010).
- 2) S. Yoshida *et al.*, *Nat. Nanotec.* 9, 588 (2014).
- 3) S. Liu *et al.*, *Sci. Adv.* 8, eabq5682 (2022)
- 4) T. L. Cocker *et al.*, *Nat. Photon.* 7, 620 (2013).
- 5) K. Yoshioka *et al.*, *Nat. Photon.* 10, 762 (2016).
- 6) T. L. Cocker *et al.*, *Nature* 539, 263 (2016).
- 7) S. Yoshida *et al.*, *ACS Photon.* 8, 315 (2021).
- 8) Y. Arashida *et al.*, *ACS Photon.* 9, 3156 (2022).
- 9) Z. Chi *et al.*, *J. Chem. Phys.* 151, 114704 (2019)