



A Coherent Case Study

産業レベルの安定性を誇る高繰返しフェムト秒レーザー「Monaco」が支える最先端の極限計測研究 ～探針増強テラヘルツ近接場を用いたサブサイクル時間分解走査型トンネル分光法～

導入先： 筑波大学 数理物理系 重川研究室様

研究室紹介

ナノスケールの科学技術を展開し、物理化学現象をより深く理解・制御して、新たな機能を創成していくには、電荷移動や遷移、伝導等の局所量子ダイナミクスを正しく評価することが重要な鍵となります。筑波大学・重川研究室では、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) と量子光学の先端技術を融合することにより、STM (原子レベル) の空間分解能で局所構造や電子状態を確認しながら、フェムト秒の時間分解能で、スピンの含めた光誘起ダイナミクスを測定することが可能な極限計測技術の開発を世界に先駆け推し進めて来ました。

これらの応用物理学研究分野における多大な功績が認められ、このほど科学技術分野における発明・発見や、学術及びスポーツ・芸術分野における優れた業績を挙げた者に贈られる紫綬褒章 (2019 年春) を、同研究室の重川秀実教授が受章されました。

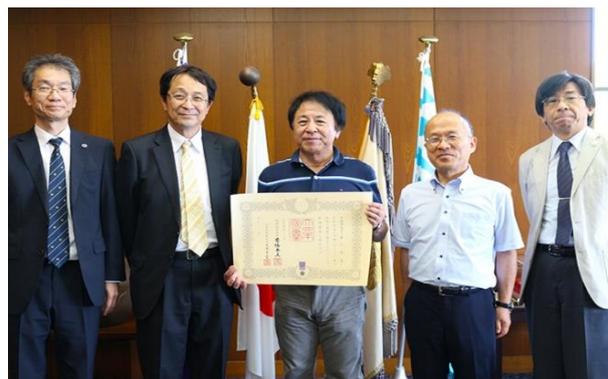


図 1 受章報告会において。中央が重川教授。
(筑波大学 HP <http://www.tsukuba.ac.jp/> より)

今回の研究の背景と目的

最近、STM の探針—試料間に印加する電圧の代わりにテラヘルツ (THz) 領域の電場を用いる THz-STM が注目されています (図 2)。THz 波の場合、LiNiO₃ などの非線形光学結晶に超短光パルスを照射することで、光整流効果により、ほぼモノサイクルパルスで構成される CEP (Carrier Envelope phase) 安定な電場を得ることができます。CEP はパルス内の電場の位相です。CEP を制御することで、探針—試料間に印加する電場の向きを制御で

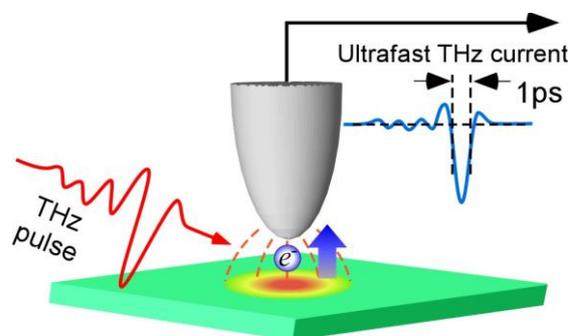


図 2 THz-STM の概要。探針—試料間を THz パルスで励起すると電場による瞬間的な印加電圧によりトンネル電流が流れる。

きます。一方、金属材料に電磁波を照射すると、材料表面の回折限界をはるかに超えた局所空間に近接場が生じます。この近接場は、材料によっては 10^5 倍程に増強されるため、図 2 の様に金属探針(ナノティップ)を用いると、ナノティップ直下の局所領域に極めて強い THz 近接場を形成することができます。そこで、CEP を制御すれば、探針—試料間に数ボルト程度の正負の電圧を印加することが可能になります。プローブがトンネル電流であることから、STM 同様、探針直下の局所領域の情報が得られます。従って、THz 近接場を STM と組み合わせることで、回折限界を超えて光の波長よりもはるかに狭い局所領域を観察出来る THz ナノ顕微鏡法が実現します。更に、トンネル電流は THz パルス電場による極めて短時間の印加電圧に対する応答です。そこで、ポンプ光で試料を励起し、THz パルスをプローブとして用いるポンププローブ法を用いることで、ポンプ光による励起後の試料の変化を時間分解測定することが可能になります。

しかし、CEP を制御して精密な測定を行い、THz-STM による超高速ダイナミクス計測を更に発展させるためには、近接場波形の正確な情報が必要不可欠です。本研究では、増強近接場の波形や強度の直接評価を THz-STM のトンネル接合を用いて可能にする方法を開発しました。これにより、超高速ダイナミクスの原子スケールでの観測や、強場により駆動される系のダイナミクス等を研究するためのプラットフォームが実現します。

研究方法

本研究では、超短パルスレーザと超高真空 STM を組み合わせてナノティップ位置の精密な操作を可能にしたシステムで実験を実施しています。また、電場の増強効果を高めるため、PtIr で被覆したタングステン STM 探針をナノティップとして用いています。図 3 は光電子放出領域とトンネル領域における 2 つの測定法の模式図です。THz 電場として、LiNbO₃ 結晶を照射して得られた 1 ピコ秒 (ps) 程度のモノサイクルパルス、プローブとして、赤外 (IR) パルス (1035 nm, 309 fs, 1 MHz) とその倍波 (517 nm) を用いています。探針(または、探針—試料間)を THz 電場で励起すると、図 3 の下段にあるように、増強近接場により探針表面(または、探針—試料間)の障壁が変調されます。その途中の状態では、THz パルスより短いプローブパルス光を照射すると、瞬間的に励起された電子の光電子放出やトンネル遷移が生じますが、それら電流の大きさは、その時点での障壁の高さに依存します。そこで、ポンプパルスとプローブパルスの間の遅延時間を変えて電流量を測定すると、電流量の遅延時間依存性から照射 THz 電場の波形が得られることとなります。

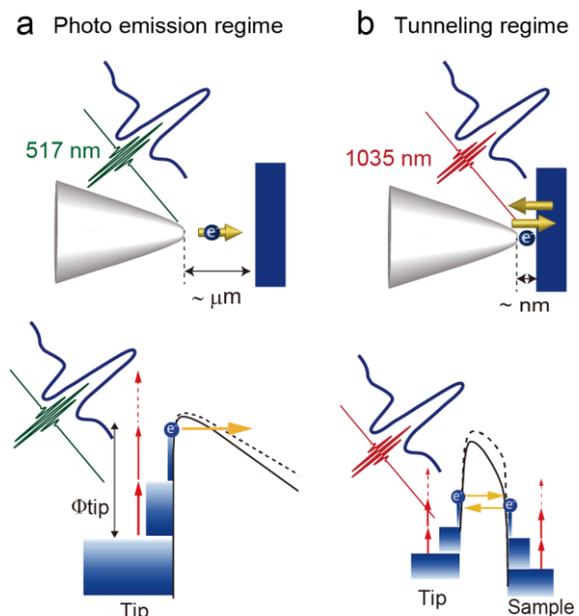


図 3 a. 光電子放出領域と b. トンネル領域での電場波形計測の模式図。THz パルス波形により障壁が変調される。それにより変化するプローブパルスによる光電子放出量、トンネル電流量から THz パルス波形が求まる。

図 4 に、実験の様子と光電子放出領域で得られた結果の例を示します。近接場(図 4d)では入射電場(図 4c)が大きく変調されていることが分かります。アンテナ理論では、電場波形を積分した形が得られるとされてきましたが、詳細は異なっており、また、探針の形状によっても大きく影響を受けることが分かりました。THzに関わらず、(探針増強)近接場を用いる場合、実際の波形を実験的に求める事の重要性が分かります。ナノ構造を機能素子として利用したり、強電場で電荷を制御する場合でも印加電場の波形は重要になりますので、本手法が重要な役割を担うことが期待されます。

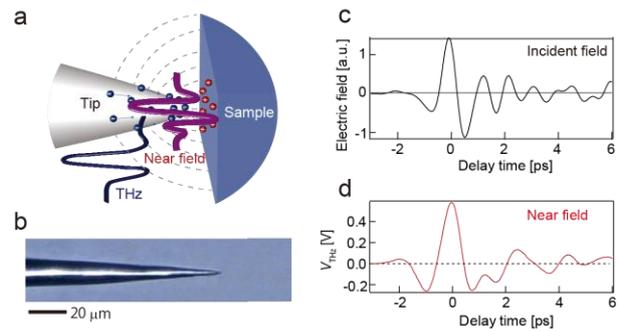


図 4 実験結果の例。a. 励起電場と増強近接場の関係。b. 用いた STM 探針の写真。c. 照射 THz 電場の元の波形。d. 光電子放出領域で求めた、探針増強 THz 電場波形。

作製したシステム

使用した超短パルスレーザー光源は、堅牢性の高い LD 励起 MOPA デザインの高繰返しフェムト秒発振レーザー「Monaco」(波長: 1035 nm、出力: 40W、パルス幅: <350 fs、繰返周波数: 1 MHz、後に 50 MHz にアップグレード)。図 5 にシステムの模式図、図 6 に写真を示します。Monaco から出力されるパルス光は、まずビームスプリッター(BS)を用いて 2 つに分割し、それぞれ THz 発生、試料のポンプ光として用います。高効率な THz 発生のために LiNbO₃ 結晶を用いたパルス面傾斜法を採用し、発生した THz パルスはポラライザー(WGPs)による強度調整後、THz ビームスプリッターを用いてポンプ光と合流させ、超高真空チャンバー内の STM 探針-試料間に集光します。ポンプ光は用途に応じて、基本波(1035 nm)と BBO を用いて作製した第二高調波(517 nm)を切り替えて使用します。

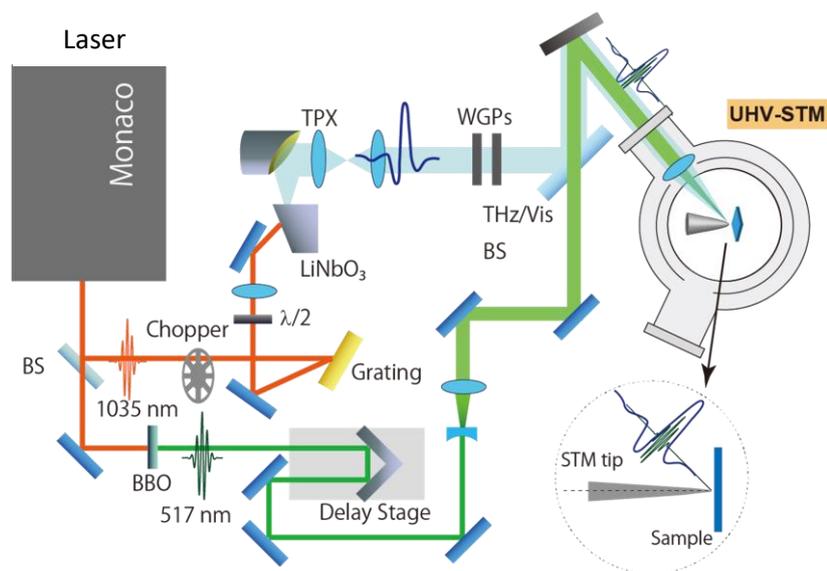


図 5 システム模式図。

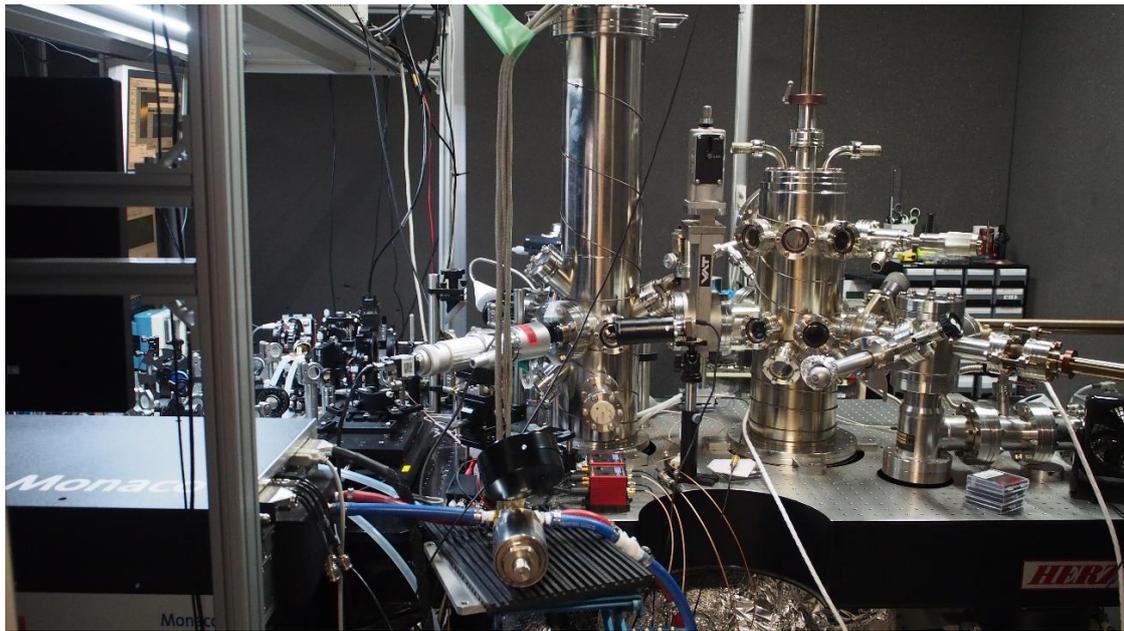


図 6 Monaco フェムト秒レーザ(左手前)と THz-STM システム(右奥)の概観。

時間分解測定の実例

本研究で開発した THz-STM を用いて行った時間分解測定の実例を図 7 に示します。試料は 2H-MoTe₂ で、半導体的な特性を持つ材料で、図 7a に見られるように非常に欠陥の多い構造を持っています。こうして、試料の様子を原子レベルで観察出来るのが、時間分解 STM の大きな利点の一つです。

図 7b が時間分解測定の実例の結果です。遅延時間は THz パルスから IR パルスまでの時間を正としてあります。従って、図の遅延時間正側には、図 4 でも示したように THz の波形が見られます。一方、遅延時間負側が、IR パルスで系を励起した後の緩和の様子を表しています。詳細は論文に記載してありますが、緩和寿命には光量依存性などが見られ、STM 像とあわせることで、欠陥の影響等、局所ダイナミックスの詳細な物理的考察を行うことが可能になります。

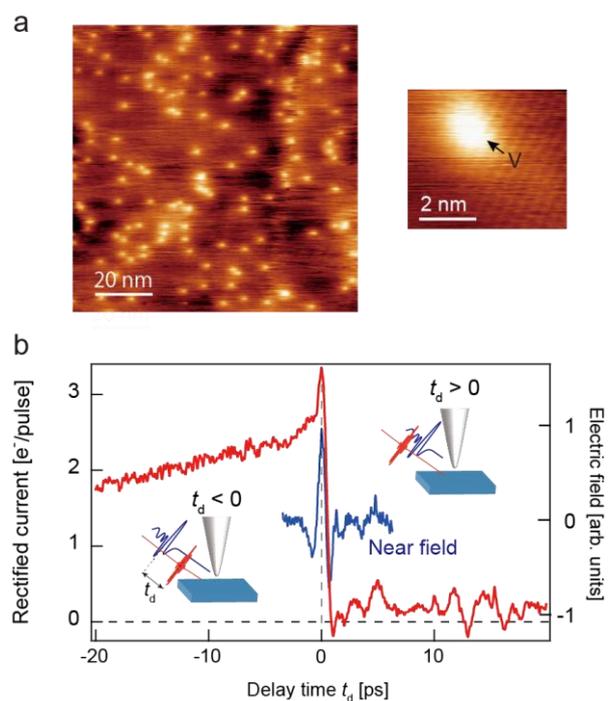


図 7 2H-MoTe₂ を試料とした時間分解測定結果の実例。
a) STM 像、b) 時間分解スペクトル。

レーザ導入の決め手

「レーザに最も期待した条件は、繰返し周波数が高いこと。それと高強度。テラヘルツ光を最も効率よく発生させるためには、高いパルスエネルギーが必要です。精度の高い測定を行なおうとすると、繰返しを高くする必要があります。高繰返しと高強度、その両方を満たすレーザがなかなか見つかりませんでしたが、コヒレント社の Monaco がその要件にぴったりあいました。

当初 1 MHz モデルを導入しましたが、研究を始めてみると、それでも不十分である事が分かり、先日最大の 50 MHz にアップグレードしてもらいました。また出力もこれまで 20W に抑えてきましたが、周囲の光学系もフルパワーの 40W に耐えられるよう調整を終え、現在は、フルパワーでも、安定して実験できています。」(吉田准教授)

「Monaco では諸々の条件設定を調整できる柔軟性と高い安定性により、測定対象となる試料の範囲が広がりました。材料に応じてパルスエネルギーと繰返し周波数を調整し、SN 比を向上させることができ、新材料の特性評価などに力を発揮すると思います。」(嵐田助教)

「今回の研究で、探針近傍のテラヘルツ増強近接場波形を実験的に求める技術を開発することに成功しました。プローブ光を走査しポイントごとに測定を行う事で、探針上の異なる場所における情報も得られます。実際に印加される電場パルスの波形を十分に確認し調整してから実験を行えることが重要で、独自の STM 技術と Monaco レーザによって、初めて可能になりました。

先に開発してきた時間分解測定技術とは相補的な関係にあります。これまでできなかった実験も可能となり、また操作が容易であることから、今後、多くの研究者が参入しやすくなり、応用の範囲も格段に広がるものと思います。本研究の成果は、科学技術の発展において、大切な役割を果たすことが期待されます。」(重川教授)

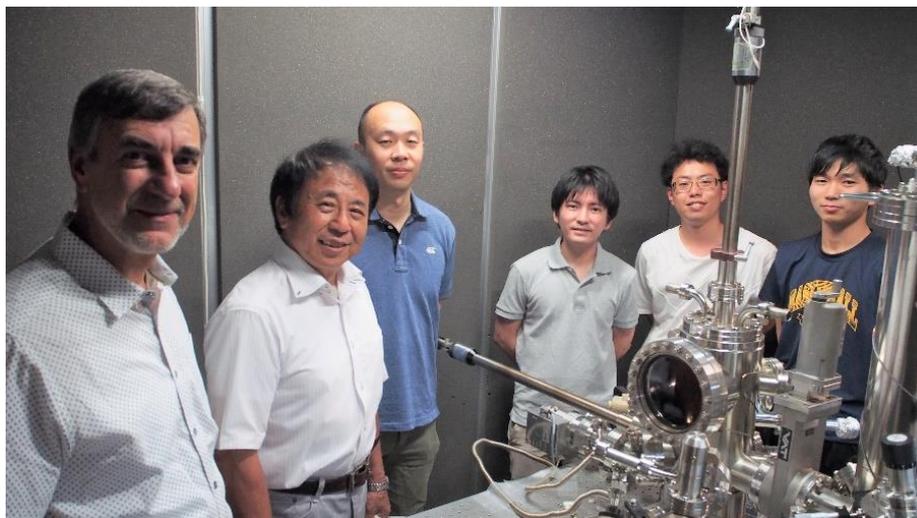


図 8 研究室にて。右から、研究室の四宮氏、五十嵐氏、嵐田助教、吉田准教授、重川秀実教授、コヒレント社 Marco Arrigoni

参考文献: Sub-cycle transient scanning tunneling spectroscopy with visualization of enhanced terahertz near-field. Shoji Yoshida, Hideki Hirori, Takehiro Tachizaki, Katsumasa Yoshioka, Yusuke Arashida, Zi-Han Wang, Yasuyuki Sanari, Osamu Takeuchi, Yoshihiko Kanemitsu, and Hidemi Shigekawa, ACS Photonics, 6, 1356-1364(2019).

研究室 HP: <http://dora.bk.tsukuba.ac.jp/>