

# 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

吉田昭二\*・嵐田雄介・茂木裕幸・武内 修・重川秀実

筑波大学数理物質科学研究科 ☎ 305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1

(2021 年 9 月 15 日受付；2021 年 10 月 22 日掲載決定)

## Ultrafast Dynamics Measurement by STM Combined with Advanced Optical Technologies

Shoji YOSHIDA\*, Yusuke ARASHIDA, Hiroyuki MOGI, Osamu TAKEUCHI and Hidemi SHIGEKAWA

Faculty of Pure and Applied Science, University of Tsukuba, 1-1-1, Tsukuba, Ibaraki 305-8573

(Received September 15, 2021 ; Accepted October 22, 2021)

In recent years, the rapid development of technology coupling optical light with Scanning Probe Microscopes has made it possible to investigate the quantum dynamics of materials and unravel the light-matter interaction on the atomic scale spatial resolution and ultrafast time resolution. This article introduces recent experimental results achieved by a novel time-resolved STM that utilizes a transient tunneling current driven by an electric field of the sub-cycle optical pulse. Finally, we provide a future perspective of the technology.

KEYWORDS : scanning probe microscopy, ultrafast dynamics, terahertz

### 1. はじめに

物質の特性を明らかにするには、発光や吸収、反射率などをダイナミクスまで含めて評価し、物質と光の相互作用を詳細に調べることが可能な光学測定が重要な役割を担う。しかし、物質に光を照射することで生成する様々な準粒子のダイナミクスとその素過程の本質的な時間スケールはナノ秒以下の超高速領域に、また空間的には原子～ナノメートルスケールにある。従って、光誘起現象の詳細を直接捉えるため極限的に高い時間と空間の分解能を併せ持つ測定技術の実現が求められてきた。

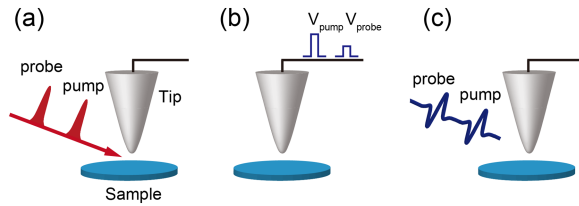
従来、光学測定は光の回折限界により、基本的には用いる光の波長程度の空間分解能しか持ちえなかった。しかし、走査プローブ顕微鏡が開発され、プローブ探針先端で生じる光電場の探針増強効果によって得られる近接場をナノスケールの局在光として使うことで回折限界の制約が打ち破られ、今では原子～分子のスケールで物質の光学的性質を測定し評価することが可能になった<sup>1-4)</sup>。

特にここ数年、光とプローブ顕微鏡の融合技術の進展の速さには目を見張るものがある。STM ラマン測定では、単一分子サイズ以下の空間分解能が示され<sup>3)</sup>、STM 発光分光では単一分子間のエネルギー輸送の可視化<sup>4)</sup>や meV レベルの高いエネルギー分解能での単一分子発光計測<sup>5)</sup>も可能になってきている。

一方、我々はこれまで超短パルス光と STM を組み合わせた時間分解 STM の開発を進めてきたが<sup>6-8)</sup>、同分野でもレーザー光学の最新技術とアイデアを導入することで新たな展開が見られている。特に THz～赤外光の幅広い波長域において光パルス内電場位相 (Carrier Envelope Phase, CEP) を制御・安定化することが可能となり、その利用が注目されている。例えば、探針-試料間の電子トンネリングを光電場によりコヒーレントに駆動できることが示され<sup>9-12)</sup>、同手法を原理として用いたコヒーレントな電流制御は数 100 as の領域に迫っている<sup>13)</sup>。

本稿では CEP 制御光を組み合わせた STM の最近の研究成果を中心に紹介し、将来展望について概観する。

\*E-mail : yoshida@ims.tsukuba.ac.jp



**Fig. 1.** (color online). Schematics illustration of time-resolved STM (a) Optical pump-probe STM (b) Electrical pump-probe STM (c) light-field driven STM.

## 2. 走査プローブ顕微鏡を用いた超高速ダイナミクス計測

STM, AFM を用いた時間分解計測法には様々なアプローチが存在するが、現在よく使われている主な計測方法を Fig. 1 に示す。まず Fig. 1 (a) の光ポンプ-プローブ STM は筆者らのグループが中心に開発を進めてきた手法であるが、光パルスを探針-試料間に照射することにより変化するトンネル電流の大きさがパルス対の間の遅延時間に依存することを利用してダイナミクスを計測する。サブ ps の時間分解能で GaAs 系半導体ナノ構造の光キャリアのダイナミクスのイメージングに用いられてきたが<sup>6-8)</sup>、最近では多探針 STM と組み合わせることで遷移金属ダイカルコゲナイド原子層など二次元半導体に対しても適用されている<sup>14)</sup>。円偏光パルスと組み合わせた偏光変調手法を用いることで半導体スピンドイナミクスを計測することも可能である<sup>15, 16)</sup>。さらに NC-AFM と組み合わせた方式でも光誘起で起こる探針-試料間の静電相互作用の変化を通して ps オーダーのキャリア寿命測定がなされている<sup>17, 18)</sup>。

Fig. 1 (b) は (a) の光パルスを矩形波のトンネル電圧パルスに置き換えた方式である<sup>19)</sup>。最初の  $V_{\text{pump}}$  パルスでは、STM 観察に用いる DC 電圧より高い電圧でトンネル電流をパルスの的に試料に注入することで、非弾性トンネル過程などにより試料の状態変化を誘起し、 $V_{\text{probe}}$  印加時に流れるパルス電流を励起後のダイナミクスの観測に用いる。 $V_{\text{probe}}$  電圧の大きさは任意に調整できるために、 $V_{\text{pump}}$  で誘起された電子状態の変化を STS 測定のようにエネルギー分光することができ励起状態の詳細な解析が可能である<sup>20, 21)</sup>。電圧パルスの幅で決まる時間分解能は信号線の高周波損失により 100 ps ~ 数 ns 程度にとどまっているが、さらなる高時間分解能化に向けた装置改良も進められている<sup>22)</sup>。変位電流の評価が重要であるが、光を試料-探針間に導入する工夫が必要なく、レーザー由来の熱の問題もないので極低温 STM への導入もしやすい。単一磁性原子のスピン緩和<sup>19)</sup>、単一ドープメントへの電荷捕獲過程<sup>20, 21)</sup> など ns オーダーのダイナミ

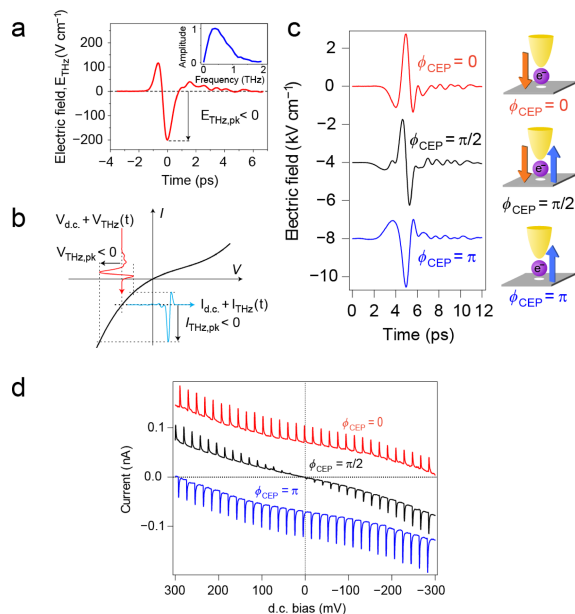
クスの計測に用いられている。

Fig. 1 (c) は光電場を用いてトンネル電流を駆動する方式であり Fig. 1 (b) の電圧パルスの役割を光電場に置き換えたものと言える。トンネル電流を駆動するため、パルス内の電場位相 (キャリアエンベロープ位相 = CEP) が毎パルス固定されていることに加え、電場駆動のトンネル電流が正負に流れて相殺されないように電場のサイクル数が 1 周期程度に少なくかつ正負非対称な電場波形を持つことが求められる。この方式は最初に THz パルスを用いて Cocker らによって開発された<sup>9)</sup>。THz パルスは数 meV の低い光子エネルギーであり、通常、光によるキャリア励起は伴わないため、光電場の効果のみを考えればよい。光電場駆動方式では電圧ポンプ-プローブ方式のようにケーブル損失の問題がなく、ps オーダーの高い時間分解能を実現できることが大きな利点である。

## 3. THz-STM によるトンネル電流のコヒーレント制御

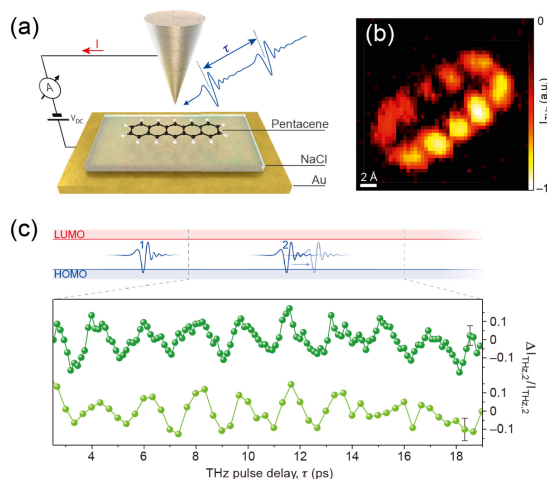
本章では THz パルスを用いた光電場駆動型の時間分解 STM (THz-STM と呼ぶ) について詳しく紹介する。THz パルスは光伝導アンテナや LiNbO<sub>3</sub>, ZnTe などの非線形光学結晶にフェムト秒レーザーを照射することで光整流効果によって発生させ、Fig. 2 (a) に示すような CEP 安定なサブサイクルの波形が得られる<sup>23)</sup>。この THz パルスがトンネル接合に照射されると、STM 探針が THz 帯の電磁場と非常に強くカップリングすることで先端に強い THz 近接場が発生する。THz 電場増強は  $10^5$  程度と非常に大きいため<sup>9, 10)</sup>、トンネル電流を駆動するために必要な大きな電場強度 ( $\sim 1$  V/nm (=  $\sim 10$  MV/cm) 程度) を比較的容易に得ることができる。

THz パルスがトンネル接合に照射されると Fig. 2 (b) に示すように通常のトンネル電圧  $V_{\text{DC}}$  が  $V_{\text{THz}}(t)$  によって変調され THz 誘起電流  $I_{\text{THz}}(t)$  が流れる。図のようにトンネル接合の電流-電圧曲線 ( $I$ - $V$  曲線) が非線形であると、予想されるトンネル電流の時間波形は図のように負側により大きく流れ、実効的な  $I_{\text{THz}}$  のパルス幅は  $V_{\text{THz}}$  のそれよりさらに短くなるため 1 ps 以下の高い時間分解能を得られる場合も多い<sup>11, 24)</sup>。我々は、この THz-STM の基本的な原理を実証し、THz の CEP 位相に依存してトンネル電流の方向をコヒーレントに制御できることを示した<sup>10)</sup>。Fig. 2 (c) に示すような THz 波形をトンネル接合に照射すると、 $\phi_{\text{CEP}} = 0$  の波形では電子は探針から試料へ、 $\phi_{\text{CEP}} = \pi$  では試料から探針へ、 $\phi_{\text{CEP}} = \pi/2$  では双方向に流れ相殺されることが期待される。実際に HOPG 表面を用いて得られた実験結果を Fig. 2 (d) に



**Fig. 2.** (color online). (a) Terahertz pulse electric field waveform and corresponding frequency spectrum (inset) generated using THz antenna. (b) Schematic of the tunnelling  $I$ - $V$  curve of an STM, where the d.c. bias,  $V_{\text{d.c.}}$ , drives a d.c. current,  $I_{\text{d.c.}}$ . The terahertz pulse coupled to the STM tip generates a time-dependent voltage bias,  $V_{\text{THz}}(t)$ , that drives an ultrafast terahertz-induced current,  $I_{\text{THz}}(t)$ . (c) Electric field waveform of THz pulses with different CEPs ( $\phi_{\text{CEP}} = 0, \pi/2$  and  $\pi$ ). (d) CEP dependence of tunnel current as a function of d.c. bias measured on HOPG ( $V_s = 1$  V,  $I_s = 0.5$  nA). The spectra with  $\phi_{\text{CEP}} = 0$  and  $\pi$  are offset by  $\pm 0.07$  nA for clarity. From Ref. 9, 10.

示す。通常の  $V_{\text{DC}}$  を掃引して得られる  $I$ - $V$  曲線に 1 kHz 周期の繰り返し THz パルス照射によって THz 誘起電流が生じることで  $I_{\text{THz}}$  成分が楕状に観察されている。 $\phi_{\text{CEP}}$  が 0 と  $\pi$  で期待通り  $I_{\text{THz}}$  の正負が反転しているが、 $\pi/2$  では電流の方向が  $V_{\text{DC}}$  に依存している。これは  $I$ - $V$  カーブの非線形性が  $V_{\text{DC}}$  によって変化するためである。またこの実験から 1 パルス当たり  $10^4$  個を超える電子を瞬間的に駆動できることが示された。換算電流にして mA オーダーと通常の STM 観察条件からかけ離れた高電流注入になるため、これを応用して STM 探針直下に強い非平衡状態を作り出すことも期待される。Jelic らは、このように高い瞬間電流をフィードバック電流として用いた場合でも Si(111)  $7 \times 7$  表面を原子分解能で観察できることを報告している<sup>11)</sup>。これはきわめて高密度の電流が探針-試料原子間に局在して流れていることを示す驚くべき結果であると同時に THz-STM が通常の STM と遜色のない高い原子レベルの空間分解能を有することを示している。

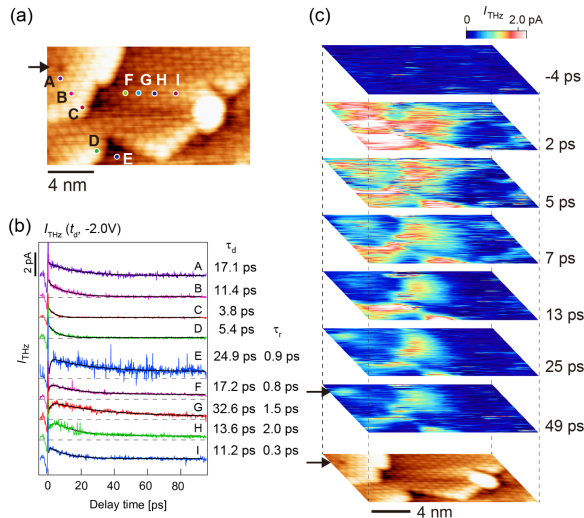


**Fig. 3.** (color online). (a) Experimental set-up. (b) THz current image taken over single a pentacene molecule. (c) THz pump- THz probe measurement of a single pentacene molecule's time dynamics. From Ref. 24.

#### 4. THz-STM を用いた単一分子ダイナミクス計測

次に、この THz 電流を用いた時間分解計測例を紹介する。Cocker らは、**Fig. 3** (a) に示すように NaCl 単層/Au(110) 表面上に吸着した単一ペンタセン分子の THz 誘起振動ダイナミクスを観測した<sup>24)</sup>。**Fig. 3** (b) にペンタセン単分子上で測定された  $I_{\text{THz}}$  像を示す。トンネル電圧は分子軌道と非共鳴な試料フェルミ面近傍 ( $V_{\text{DC}} = 6$  mV) に設定しているが、THz パルス照射ごとに分子の HOMO から探針への電子トンネリングが誘起されるため  $I_{\text{THz}}$  像にペンタセン HOMO 軌道の分布を反映した形状が観測される。この HOMO からのトンネリングは THz ピーク電場付近のごく短い時間 ( $< 1$  ps) でのみ起こることから分子の状態変化をスナップショット的に捉えることが可能である。そこで彼らはさらに THz パルスをポンプ光として分子を励起し、その後の単一分子ダイナミクスを時間分解計測している。

**Fig. 3** (c) にその測定結果を示す。横軸遅延時間に対する  $I_{\text{THz}}$  のプロットからおおよそ 2 ps 周期の振動成分が観測されている。この非常にゆっくりとした振動成分は分子と NaCl 表面間のファンデルワールス結合の振動に対応すると考えられる。ポンプ光の THz パルスは瞬間的な分子の帯電させるため、それが振動のトリガーになったと考えられる。このような時間分解測定では測定中長時間単分子やトンネル接合を安定に保つ必要があるため、 $I_{\text{THz}}$  は 1 電子/パルス以下、定常電流に換算して 100 fA 以下の非常に低い設定で実験を行う必要がある。



**Fig. 4.** (color online). Time-resolved analysis of electron motion in  $\text{C}_{60}$  thin film. **a.** STM image of the  $\text{C}_{60}$  multilayer structure in a region including steps and a vacancy defect, indicated by the arrow, **(b)** Time-resolved spectra obtained at A to I in **(a)**. **(c)** Snapshots obtained over the area shown in **(a)**. From Ref. 25.

## 5. $\text{C}_{60}$ 分子薄膜中電子ダイナミクスのイメージング

続いて、Au(111)上  $\text{C}_{60}$  分子薄膜の電子ダイナミクスのイメージング計測について紹介する<sup>25)</sup>。Fig. 4 (a) の試料表面の STM 像より  $\text{C}_{60}$  分子結晶のステップテラス構造が観察されている。この表面にポンプ光として用いる赤外パルス (309 fs,  $\lambda=1035$  nm) を照射すると Au(111) のフェルミ面近傍の電子が光励起され  $\text{C}_{60}$  の LUMO にその一部が注入される。それに起因するトンネルコンダクタンスの変化を  $I_{\text{THz}}$  の遅延時間依存性として捉えることで電子ダイナミクスの時間分解測定が可能になる。

Fig. 4 (b) に Fig. 4 (a) の A~I 点で測定された時間分解スペクトルを示す。0 ps において光励起による電子注入で  $I_{\text{THz}}$  がステップ関数的に増加し、その後の緩和に伴い減少する。最上層のテラス (A~D) では単一指数関数フィッティングで得られる減衰定数  $\tau_d$  はサイトごとに大きく異なり、ステップ端に近づくほど電子寿命が短くなっている。一方中段以下 (E~I) では A~D とスペクトル形状が変化し、0 ps からの立ち上がりが緩やかになり、その後の寿命も長い。

次にこの面内の電子ダイナミクスの変化の空間依存性を明らかにするために行った  $I_{\text{THz}}$  の時間分解イメージング結果を Fig. 4 (c) に示す。光励起直後 2 ps では、中央右の欠陥部分以外では電子が一様に分布しているが、時間の経過とともに分布が大きく変化しステップ上端では電子がほとんどいなくなる一方で、ステップ下端に電

子の蓄積が観測され 49 ps 後も滞在していることが分かる。あわせて行った STS 測定より LUMO のエネルギー位置がステップ上端から下端に行くにつれて低くなることが求められており、ポテンシャルの低いステップ下端に電子移動が起きていると解釈できる。さらに矢印で示した暗い欠陥部分では欠陥単位により電子が捕獲されている様子が観測されている。このように単一分子レベルの空間分解能で面内の電荷移動ダイナミクスを可視化することが可能となった。Fig. 4 (c) の時間ごとの  $I_{\text{THz}}$  像を 1 フレームとして電子ダイナミクスの動画を作製することもできる。

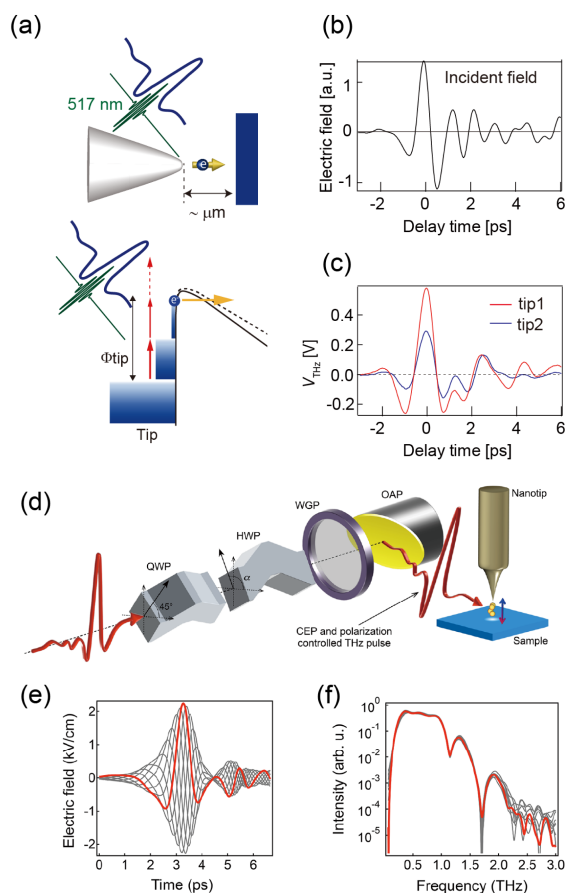
## 6. THz 近接場の計測と精密制御

THz-STM を用いてほかにも二次元半導体  $2\text{H-MoTe}_2$ <sup>26)</sup> や InAs ナノドット<sup>9)</sup> などの半導体キャリアダイナミクスの計測もされており、今後もさらに幅広い応用が期待されるが、そのためには得られる信号  $I_{\text{THz}}$  の定量的な解釈が重要な課題となる。通常、STM では  $I$ - $V$  曲線を測定して電子状態を評価する。 $I_{\text{THz}}$  には THz パルスが照射された瞬間の電子状態が反映されるが、THz パルスの電場波形の形状は Fig. 2 (a) のように正負に振動しているために測定される  $I_{\text{THz}}$  から過渡的な  $I$ - $V$  曲線を求めるにはエネルギー方向の精度などについて十分な注意が必要である<sup>12, 27)</sup>。

さらに、探針 THz 近接場の電場波形は入射 THz パルスと異なるために THz 近接場波形の計測と制御が必要不可欠となる。そこで、我々は光電子を用いた THz 近接場のサンプリング手法を開発した。Fig. 5 (a) の概要を示す。探針先端に強い可視域 (517 nm) のフェムト秒パルスを照射すると探針先端での多光子吸収により励起された探針金属中の電子の一部が光電子として放出される。THz 電場が印加されると実効的な真空障壁が変化するため、電子が光励起されている状態で印加される THz 電場の強度に依存して光電子の放出量が増減する。従って、その変化量をポンプ-プローブ測定することで探針先端の THz 近接場波形が得られることになる。測定結果を Fig. 5 (c) に示す。Fig. 5 (b) の入射 THz 波形が正負対称に近い波形であるのに対して、Fig. 5 (c) は単極性の強い非対称な波形になっており大きく形状が異なっていることがわかる。さらに、探針の形状によっても近接場波形が変化していることから近接場波形計測の必要性が強く認識される。

また Peller らは、単一分子の THz パルス誘起スイッチングを利用した THz 近接場の計測法を開発し、同様に入射場と近接場波形の違いを議論している<sup>28, 29)</sup>。

Yoshioka らは Fig. 5 (d) に示すように THz 広帯域波

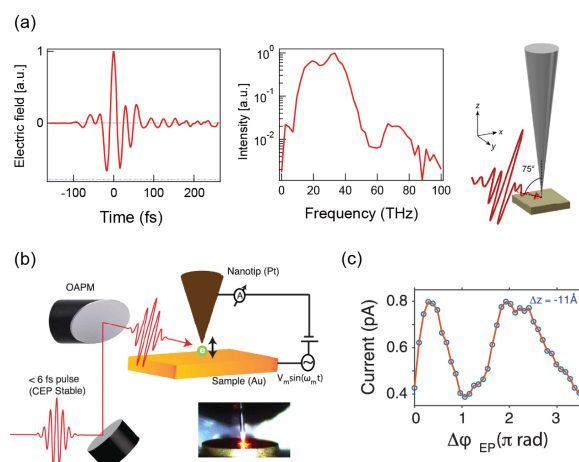


**Fig. 5.** (color online). (a) Measurement principle of THz near field sampling (b) Waveform of the incident THz field. (c) THz near field waveform measured at tip apex. (d) Set-up of THz-STM with CEP controlled single-cycle THz pulse QWP, quarter-wave plate ; HWP, half-wave plate ; WGP, wire grid polarizer ; OAP, off-axis parabolic mirror. (e) Far-field single-cycle THz waveforms with different CEPs and (f) corresponding THz frequency spectra. From Ref. 26, 30.

長板を用いて入射 THz パルスの CEP 位相を連続的に制御可能な光学系を構築し (Fig. 5 (e)), THz 近接場 CEP 位相の制御を行っている<sup>30, 31</sup>). Fig. 5 (f) は Fig. 5 (e) のフーリエスペクトルである。測定との組み合わせによって THz 近接場波形の精密制御が可能になり、より定量的な計測が実現すると期待される。

## 7. さらに高い時空間分解能での計測へ向けて

現状では、THz-STM の時間分解能は THz パルス幅の制約によりサブ ps 程度であり、フェムト秒時間領域のダイナミクスを観察するためにはさらなる時間分解能の向上が求められる。我々のグループは現在 8 fs の赤外パルスと GaSe 結晶を組み合わせた中赤外発生を組みを構築し Fig. 6 (a) に示すような中赤外サブサイクルパルスの発生に成功している<sup>32</sup>). STM と組み合わせた計測を進めており 20 fs 以下の時間分解能での計測が可能になってい



**Fig. 6.** (color online). (a) Waveform of sub-cycle MIR pulse detected by Electro-optic sampling and corresponding FFT spectra. (b) Schematic of the experimental set-up ; <6 fs carrier-envelope phase (CEP) stable optical pulses are focused by an off-axis parabolic mirror (OAPM) at the apex of a Pt/Ir nanotip in tunneling contact with the Au surface (c) Modulation of the field-driven tunneling current as a function of CEP of the laser pulses. From Ref. 13 and 32.

る。Garg らは Fig. 6 (b) に示すようにパルス幅 6 fs 以下の CEP 安定赤外パルスを用いたシステムを開発した<sup>13</sup>). Fig. 6 (c) は光誘起トンネル電流の CEP 依存性である。CEP 位相に依存してトンネル電流が変化しており  $0.1\pi$  の位相変化、すなわち 200 as の時間精度でトンネル電流の制御が可能であることが示されている。また、パルス内に含まれる数サイクルの電場波形を用いた測定ではあるが、電場誘起電流の変化が 1 fs 程度の分解能で観察されている。ただし、800 nm 中心の広帯域赤外パルスを用いているため短波長域の成分を持ち、光電場によるトンネル電流 (field driven tunneling) に加え、光子吸収による電子励起 (photon driven tunneling) 過程の影響が含まれることにも注視する必要がある。

時間分解能を向上させると、時間とエネルギーの不確定性関係からエネルギー精度の低下が避けられなくなるなどの懸念に加えて実験の難易度も飛躍的に高くなる。従って、非常にチャレンジングな課題であるが、電子遷移に伴う分子の電子状態変化や構造変化、分子内振動の観測、光誘起相転移の初期過程の観察などこれまで直接観察することが叶わなかった物理現象の多くを捉えることが可能になると期待される。夢が拓ける目標であり、我々も取り組みを進めているところである。

## 8. ま と め

現在、非常に多くの研究グループが時間分解測定分野に参入し、冒頭で紹介したように計測手法も多様化し

ている。レーザー技術が複雑である点が一つの課題であったが、最近、外部から電氣的にポンプロープ光源を制御する技術が開発され、注目されている<sup>33)</sup>。更に、走査プロープ顕微鏡に限らず、時間分解電子顕微鏡<sup>34)</sup>なども開発が進められており、光電子分光などと併せて、時空間分解計測は今や物性計測の大きなトレンドになっている。今後様々な計測手法を駆使して物質の動的性質の理解が一段と進むことを期待してやまない。

## 謝 辞

本稿で紹介した研究の一部は科研費（課題番号 20H00341, 20H05662, 17H06088）のサポートのもとに行われた。

## 文 献

- 1) R. Zhang, Y. Zhang, Z.C. Dong, S. Jiang, C. Zhang, L.G. Chen, L. Zhang, Y. Liao, J. Aizpurua, Y. Luo, J.L. Yang and J.G. Hou : *Nature* **498**, 82 (2013).
- 2) B. Yang, G. Chen, A. Ghafoor, Y. Zhang, Y. Zhang, Y. Zhang, Y. Luo, J. Yang, V. Sandoghdar, J. Aizpurua, Z. Dong and J.G. Hou : *Nat. Photonics* **14**, 693 (2020).
- 3) J. Lee, K.T. Crampton, N. Tallarida and V.A. Apkarian : *Nature* **568**, 78 (2019).
- 4) H. Imada, K. Miwa, M. Imai-Imada, S. Kawahara, K. Kimura and Y. Kim : *Nature* **538**, 364 (2016).
- 5) H. Imada, M. Imai-Imada, K. Miwa, H. Yamane, T. Iwasa, Y. Tanaka, N. Toriumi, K. Kimura, N. Yokoshi, A. Muranaka, M. Uchiyama, T. Taketsugu, Y.K. Kato, H. Ishihara and Y. Kim : *Science* **373**, 95 (2021).
- 6) Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa : *Nat. Photonics* **4**, 869 (2010).
- 7) S. Yoshida, M. Yokota, O. Takeuchi, H. Oigawa, Y. Mera and H. Shigekawa : *Appl. Phys. Express* **6**, 032401 (2013).
- 8) S. Yoshida, Y. Terada, R. Oshima, O. Takeuchi and H. Shigekawa : *Nanoscale* **4**, 757 (2012).
- 9) T.L. Cocker, V. Jelic, M. Gupta, S.J. Molesky, J.A.J. Burgess, G.D.L. Reyes, L.V. Titova, Y.Y. Tsui, M.R. Freeman and F.A. Hegmann : *Nat. Photonics* **7**, 620 (2013).
- 10) K. Yoshioka, I. Katayama, Y. Minami, M. Kitajima, S. Yoshida, H. Shigekawa and J. Takeda : *Nat. Photonics* **10**, 762 (2016).
- 11) V. Jelic, K. Iwaszczuk, P.H. Nguyen, C. Rathje, G.J. Hornig, H.M. Sharum, J.R. Hoffman, M.R. Freeman and F.A. Hegmann : *Nat. Phys.* **13**, 591 (2017).
- 12) T.L. Cocker, V. Jelic, R. Hillenbrand and F.A. Hegmann : *Nat. Photonics* **15**, 558 (2021).
- 13) M. Garg and K. Kern : *Science* **367**, 411 (2020).
- 14) H. Mogi, Z.-H. Wang, T. Bamba, Y. Takaguchi, T. Endo, S. Yoshida, A. Taninaka, H. Oigawa, Y. Miyata, O. Takeuchi and H. Shigekawa : *Appl. Phys. Express* **12**, 045002 (2019).
- 15) S. Yoshida, Y. Aizawa, Z.H. Wang, R. Oshima, Y. Mera, E. Matsuyama, H. Oigawa, O. Takeuchi and H. Shigekawa : *Nat. Nanotechnol.* **9**, 588 (2014).
- 16) Z.H. Wang, C.H. Yoon, S. Yoshida, Y. Arashida, O. Takeuchi, Y. Ohno and H. Shigekawa : *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 7256 (2019).
- 17) Z. Schumacher, A. Spielhofer, Y. Miyahara and P. Grütter : *Appl. Phys. Lett.* **110**, 053111 (2017).
- 18) Z. Schumacher, R. Rejali, R. Pachlatko, A. Spielhofer, P. Nagler, Y. Miyahara, D.G. Cooke and P. Grütter : *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **117**, 19773 (2020).
- 19) S. Loth, M. Etzkorn, C.P. Lutz, D.M. Eigler and A.J. Heinrich : *Science* **329**, 1628 (2010).
- 20) M. Rashidi, J.A.J. Burgess, M. Taucer, R. Achal, J.L. Pitters, S. Loth and R.A. Wolkow : *Nat. Commun.* **7**, 13258 (2016).
- 21) M. Rashidi, M. Taucer, I. Ozfidan, E. Lloyd, M. Koleini, H. Labidi, J.L. Pitters, J. Maciejko and R.A. Wolkow : *Phys. Rev. Lett.* **117**, 276805 (2016).
- 22) J. Friedlein, J. Harm, P. Lindner, L. Bargsten, M. Bazarnik, S. Krause and R. Wiesendanger : *Rev. Sci. Instrum.* **90**, 123705 (2019).
- 23) H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard and K. Tanaka : *Appl. Phys. Lett.* **98**, 091106 (2011).
- 24) T.L. Cocker, D. Peller, P. Yu, J. Repp and R. Huber : *Nature* **539**, 263 (2016).
- 25) S. Yoshida, Y. Arashida, H. Hirori, T. Tachizaki, A. Taninaka, H. Ueno, O. Takeuchi and H. Shigekawa : *ACS Photonics* **8**, 315 (2021).
- 26) S. Yoshida, H. Hirori, T. Tachizaki, K. Yoshioka, Y. Arashida, Z.-H. Wang, Y. Sanari, O. Takeuchi, Y. Kanemitsu and H. Shigekawa : *ACS Photonics* **6**, 1356 (2019).
- 27) Y. Luo, V. Jelic, G. Chen, P.H. Nguyen, Y.J.R. Liu, J.A.M. Calzada, D.J. Mildenberger and F.A. Hegmann : *Phys. Rev. B* **102**, 205417 (2020).
- 28) D. Peller, L.Z. Kastner, T. Buchner, C. Roelcke, F. Albrecht, N. Moll, R. Huber and J. Repp : *Nature* **585**, 58 (2020).
- 29) D. Peller, C. Roelcke, L.Z. Kastner, T. Buchner, A. Neef, J. Hayes, F. Bonafé, D. Sidler, M. Ruggenthaler, A. Rubio, R. Huber and J. Repp : *Nat. Photonics* **15**, 143 (2021).
- 30) K. Yoshioka, I. Katayama, Y. Arashida, A. Ban, Y. Kawada, K. Konishi, H. Takahashi and J. Takeda : *Nano Lett.* **18**, 5198 (2018).
- 31) Y. Kawada, T. Yasuda and H. Takahashi : *Opt. Lett.* **41**, 986 (2016).
- 32) K. Yoshioka, I. Igarashi, S. Yoshida, Y. Arashida, I. Katayama, J. Takeda and H. Shigekawa : *Opt. Lett.* **44**, 5350 (2019).
- 33) H. Mogi, Z. Wang, T. Banba, Y. Takaguchi, N. Endo, S. Yoshida, A. Taninaka, H. Oigawa, Y. Miyata, O. Takeuchi and H. Shigekawa : *Appl. Phys. Express* **12**, 045002 (2019).
- 34) D.S. Yang, O.F. Mohammed and A.H. Zewail : *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **107**, 14993 (2010).