

2023年1月24日

報道関係者各位

国立大学法人筑波大学  
株式会社ユニソク

## 時間分解走査トンネル顕微鏡の簡易化・安定化に成功 ～1000億分の1秒と10億分の1メートルの精度で 電子の動きを測定する技術の普及に道を開く～

現代科学は、物質の性質を顕わにする計測技術の発明と進歩を土台に発展してきました。近年は高速で時間変化する現象を捉える技術開発が盛んに進められています。背景には、スマートフォンなどで使われる半導体デバイスをさらに高性能化するため、より小さく、より動作が速いものが求められている状況があります。現在では、デバイスの基本構造の大きさは10ナノメートル(ナノは10億分の1)の領域に入り、動作時間の尺度もピコ秒(ピコは1兆分の1)領域に迫っています。

これらのデバイスの特性を十分に理解し評価するためには、ナノスケールのデバイス構造において、ピコ秒の時間領域における電子の動き(ダイナミクス)を観察する計測技術が必要です。本研究チームはその有望な方法の一つとして、原子1個1個を観察できる走査トンネル顕微鏡(STM)に超高速レーザー技術を組み合わせた時間分解STM装置を開発してきました。応用も始まっていますが、高度な技術要素に対する深い理解と高い専門性が必要で、利用拡大を進める上での課題となっていました。

本研究では、これまでの光学システムの仕組みを大幅に簡易化し、時間分解STM測定を容易に行うことが可能な装置の開発に成功しました。また、画像データ取得に必須な装置の長時間安定性も大幅に向上させることができました。具体的には、レーザーの動作をすべて電気的に制御することで光学システムを大幅に小型化し、顕微鏡内部にレーザーを集光するレンズを設置することで、試料へのレーザー照射位置が長時間安定な状況を実現しました。この装置を用い、ガリウム砒素半導体の表面における電子の挙動をピコ秒の領域で観察、ナノスケールで画像化することに成功し、装置の性能を実証しました。

本装置の開発により、この強力な計測技術を用いたダイナミクス画像の取得が従来に比べて格段に容易に、かつ安定して行えるようになりました。本技術の普及を可能にすることで、半導体デバイス材料、太陽電池材料、光触媒材料等の幅広い開発・研究分野への展開が期待されます。

### 研究代表者

筑波大学 数理物質系理工学域／イノベティブ計測技術開発研究センター

重川 秀実 教授

株式会社ユニソク 開発部

岩谷 克也 部長



## 研究の背景

スマートフォンやインターネットは私たちの日常生活に欠かせないものとなりました。集積回路などの半導体工学技術やそれらを光技術と組み合わせた光電子工学技術の飛躍的な発展が背景にあります。高性能化のために半導体デバイスの微細化が進み、現在では大きさが10ナノメートル領域(1ナノメートルは10億分の1メートル)に達し、動作する時間スケールもピコ秒領域(1ピコ秒は1兆分の1秒)に近づいています。一方で、従来の半導体材料の限界も見え始め、さらなる発展のため新たな機能性材料の研究が進められています。これらの最先端研究では、原子1個1個を区別しながらピコ秒領域の電子の動き(ダイナミクス)を観察できる計測技術が求められます。これまで、原子レベルの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡(STM)<sup>注1</sup>と超高速レーザー技術を組み合わせた装置(時間分解STM)が開発され、半導体表面における超高速ダイナミクス観察が可能になっています。しかし、フェムト秒領域の高い時間分解能など計測の高性能化が進む一方で、計測技術の高度化により取り扱いが専門的になってしまうことが大きな課題の一つでした。そのため、幅広い分野の研究者から、それぞれの目的に応じて容易に扱える時間分解STM装置の登場が強く望まれていました。

## 研究内容と成果

本研究では、STMと超高速レーザー技術を組み合わせた時間分解STM装置において、光学システムを大幅に小型化・簡易化し、操作性の改善と動作安定性の大幅な向上に成功しました。この計測技術の幅広い研究分野への普及および将来的な製品化が視野に入り、今後の大きな展開が期待されます。

光学システムの小型化・簡易化は、外部からの電気信号でレーザーパルスの出力を制御できるレーザーの仕組みを取り入れることにより実現しました。今回の開発では、レーザーパルス幅が45ピコ秒の外部制御型レーザーを採用し、時間分解能80ピコ秒を達成しました。さらに、試料に照射するレーザーパルス制御系は、パルス発生器と高速スイッチを組み合わせることで、簡易に光パルスのタイミングを制御することが可能となりました。以上の工夫により、図1aに示すように、時間分解STM装置が従来(例えば図1a下の写真のサイズ)から格段にコンパクト(図1a上の写真のサイズ)になり、操作性が大幅に改善されました。

また、時間分解STM測定を長時間安定に行うためには、レーザーを照射する位置の揺れをマイクロメートル以下まで安定化することが重要になります。これを実現するためには、光学システムやSTM装置を全て環境の振動から切り離し、レーザーを集光するレンズと探針-試料接点との相対位置関係を変化させないことが重要です。本研究では、上述の光学系のコンパクト化により光学システムをSTM除振台上に設置することが可能となりました(図1a)。併せて、超高真空中の顕微鏡内にレンズを設置することで(図1b)、試料表面上のレーザー照射位置が長時間経過しても変化しない安定な状況を実現しました(図1c)。

この装置を用いて、半導体試料(ガリウム砒素 GaAs)表面を観察し、励起された電子が170ピコ秒で元の状態に戻る様子を捉えることに成功し、ピコ秒領域の時間分解能を実証しました(図2a)。また、図2bに示すように、試料表面に存在するステップエッジ(原子レベルの段差構造の端)やナノスケールの欠陥構造の周辺では電子のダイナミクスが1ナノメートルの空間スケールで変化し、他と異なる特性を持つ様子を画像化することに成功しました。計測時には測定する場所ごとにSTM探針の位置を精密に固定し、微弱信号を取得するために必要な時間データを積算することが重要になります。上述した光学系の工夫によって二次元画像の取得も容易になり、ナノ構造におけるダイナミクス観察へのより強力なツールを実現したことが確認されました。

## 今後の展開

今回開発した装置により、時間分解 STM 測定を従来に比べて容易に長時間安定した状態で行うことが可能になりました。応用分野として、Si や GaAs などの半導体デバイス、遷移金属ダイカルコゲナイド単層膜などの原子レベルに薄い二次元材料、有機薄膜太陽電池材料、光触媒材料などが挙げられます。

小型化された光学システムは、レーザーを導入できれば既存の STM 装置に後付けも可能で、従来の STM に時間分解能機能を付加することができます。また、この光学システムを多探針のマルチプローブ顕微鏡と組み合わせることで、絶縁体基板上的の微小試料の測定が可能になり、実際のデバイスに近い構造の観察など応用範囲を格段に広げることができます[参考文献 1-3]。将来的には、よりパルス幅の短いレーザーを使用することで、時間分解能をさらに向上させることも可能です。今回の成果により、装置製品化への可能性も開けました。この計測技術が広く普及し、今後の最先端材料開発の発展に大きく貢献することが期待されます。

## 参考図

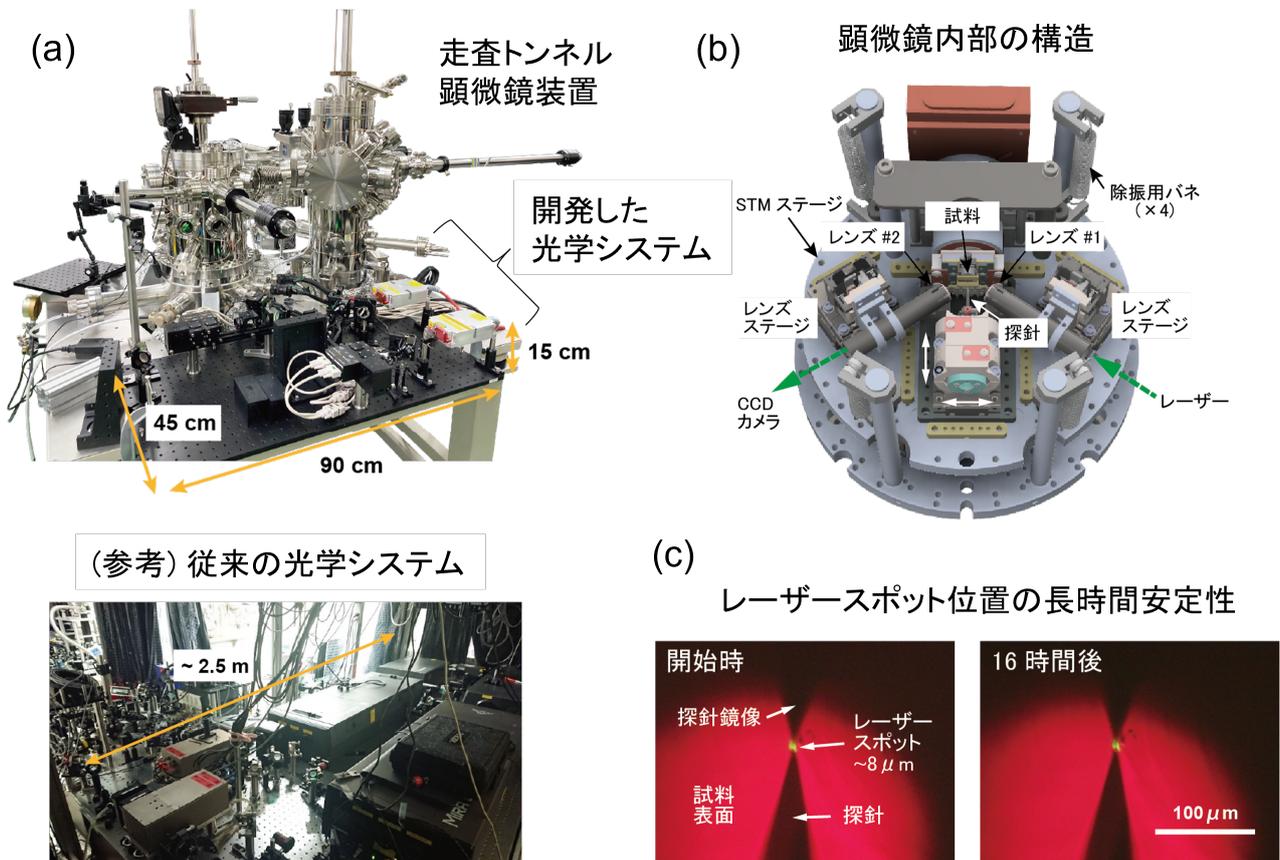


図 1 (a) 本研究で開発した装置の全体写真。光学システムを小型化し、STM 装置除振台の上に設置することで外部からの振動ノイズの影響を低減した。比較のため、従来の光学システムを下に示した。(b) 顕微鏡内部の構造。対物レンズを試料、探針と同じ土台に設置することで、振動ノイズの影響を低減し、試料表面上のレーザースポット位置を安定化させた。(c) 試料表面上のレーザースポット位置安定性。これにより長時間安定した時間分解 STM 測定が可能となる。

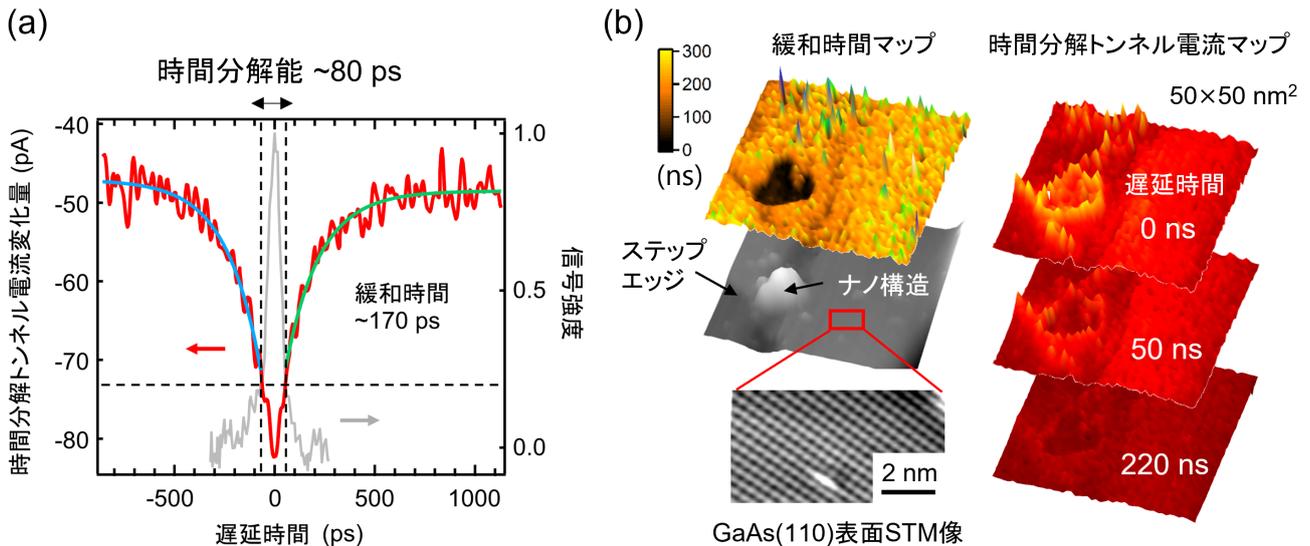


図2 (a) GaAsの時間分解トンネルスペクトル。約170psで励起状態から元の状態に戻ってくる様子(緩和過程)を検出した。装置の時間分解能は約80ps。(b) GaAs(110)表面における緩和時間マッピング測定。時間分解トンネルスペクトルを試料表面で格子点状に取得することで、緩和時間の画像化が可能となり、試料表面のナノ構造付近では電子のダイナミクスが他と異なる様子が分かる。

### 用語解説

注1) 走査トンネル顕微鏡(STM)

量子力学で説明されるトンネル効果を利用した、原子レベルの空間分解能をもつ顕微鏡。試料、探針間の距離を1ナノメートル(1ナノメートルは10億分の1メートル)程度に近づけ、両者の間に電位差をつけると、トンネル効果により電流が流れる(トンネル電流)。トンネル電流は試料-探針間距離に指数関数的に依存するため、具体的には、0.1ナノメートルの変化に対してトンネル電流は1桁変化する。この特徴を利用して、先端が原子1個ほどしかない非常に鋭い探針を、トンネル電流が一定になるように試料表面上を走査することで、試料の凹凸を0.01nmの精度で観察できる。さらに、トンネル電流は、試料と探針の電子状態に依存するため、電子状態が既知の探針を使用することで、未知の試料の電子状態を原子レベルの空間分解能で測定することができる。また、探針で原子を1個1個試料表面から拾い上げ、所定の場所に置くことで人工的な量子構造を作ることできる。発明者は1986年にノーベル物理学賞を受賞した。

### 参考文献

- [1] H. Mogi *et al.*, Appl. Phys. Express **12**, 045002 (2019).
- [2] H. Mogi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **61**, SL1011 (2022).
- [3] H. Mogi *et al.*, NPJ 2D Mater. Appl. **6**, 72 (2022).

### 研究資金

本研究は、科学技術振興機構(JST) 研究成果最適展開支援プログラム(A-STEP)、日本学術振興会 科学研究費(17H06088, 20H00341, 22H00289)を中心とした研究プロジェクトの一環として実施されました。

## 掲載論文

【題 名】 Externally-triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscopy with a time resolution of tens-picosecond

(時間分解能数十ピコ秒の外部トリガー型ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡)

【著者名】 岩谷 克也<sup>1</sup>, 横田 統徳<sup>1</sup>, 花田 啓明<sup>1</sup>, 茂木 裕幸<sup>2</sup>, 吉田 昭二<sup>2</sup>, 武内 修<sup>2</sup>, 宮武 優<sup>1</sup>, 重川 秀実<sup>2</sup>

【所属】 1) 株式会社ユニソク

2) 筑波大学 数理物質系物理工学域／イノベイティブ計測技術開発研究センター

【掲載誌】 Scientific Reports

【掲載日】 2023年1月25日

【DOI】 <https://doi.org/10.1038/s41598-023-27383-z>

## 問合わせ先

【研究に関すること】

重川 秀実 (しげかわ ひでみ)

筑波大学 数理物質系物理工学域／イノベイティブ計測技術開発研究センター 教授

TEL: 029-853-5276

Email: [hidemi@ims.tsukuba.ac.jp](mailto:hidemi@ims.tsukuba.ac.jp)

URL: <https://dora.bk.tsukuba.ac.jp>

【取材・報道に関すること】

筑波大学広報局

TEL: 029-853-2040

E-mail: [kohositu@un.tsukuba.ac.jp](mailto:kohositu@un.tsukuba.ac.jp)

株式会社ユニソク

TEL: 072-858-6456

E-mail: [info@unisoku.co.jp](mailto:info@unisoku.co.jp)