Press Release
2021 年 1 月 28 日

国立大学法人　横浜国立大学
国立研究開発法人　理化学研究所

テラヘルツ光により超高速に操られたトンネル電子が引き起こす発光を初観測

～極限時空間分解能を有する夢の分光法開発への第一歩～

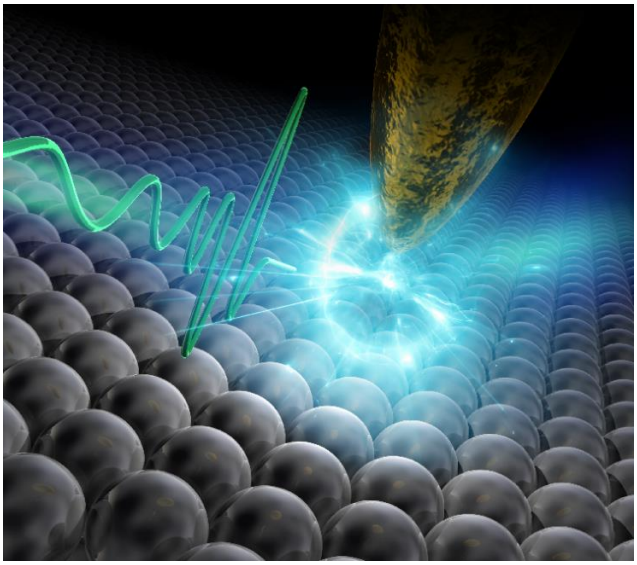
【本研究のポイント】

- テラヘルツ電場駆動走査トンネル顕微鏡(THz-STM)に発光測定手法を組み合わせた THz-STM 発光分光法を開発
- 世界で初めて超高速に駆動されたトンネル電子により励起される局在プラズモンからの発光を観測
- 原子レベルの空間分解能、ピコ秒の時間分解能でエネルギー変換過程を調べる新たな極限時空間分光手法の実現への重要な一歩

【研究概要】

横浜国立大学(以下 横国大)の武田淳教授、片山郁文教授、理化学研究所(以下 理研)開拓研究本部 Kim 表面界面科学研究室の金有洙主任研究員、今田裕上級研究員、木村謙介基礎科学特別研究員らの研究グループは、テラヘルツ(THz)光パルス[注 1]により超高速に操作されたトンネル電子[注 2]が引き金となるエネルギー変換過程を計測する新たな分光手法の開発に成功しました。これは、両グループが独自開発してきた THz 光パルスを用いて超高速に動作する走査トンネル顕微鏡(STM)[注 3]（THz-STM)と光計測が可能な STM(STM 発光分光法）という二つの世界最先端技術を組み合わせることで実現されたものであり、STM の探針と試料間に局在するプラズモン[注 4]から生じる発光の検出を行いました。この手法を発展させることで、原子スケールの空間分解能とピコ秒の時間分解能を両立して量子系のエネルギー変換過程を追跡する事が可能となり、極限時空間分解能を有する夢の分光手法実現に貢献すると期待されます。

本研究成果は、2021 年 1 月 27 日に米国化学会学術誌 ACS Photonics 誌の on-line 版に掲載され、Supplementary Journal Cover となりました。なお、本研究は、日本学術振興会(JSPS)科学研究費補助金(課題番号 20H05662, 20H00326, 18H05257, 17H06124, 20H02653, 17H04796, 18J11856, 20K22488)、科学技術振興機構(JST)戦略的創造研究推進事業 個人型研究(さきがけ)(課題番号 JPMJPR1862)の補助を受けて行われました。



THz-STM 発光分光法のイメージ図

テラヘルツ光により超高速に操られたトンネル電子が引き起こす発光を初観測

～極限時空間分解能を有する夢の分光法開発への第一歩～

【研究背景】

物質の構造や機能を極限的な時空間領域で自在に制御することは次世代のエレクトロニクス、材料科学、量子技術において重要な研究テーマと言えます。近年、超短パルスレーザーから生じる光パルスの振動電場を利用することで、電子の制御を飛躍的に高速化させることが可能になってきました。この電子制御技術と金属の微細な構造を組み合わせることで、ナノメートルスケール(10^{-9} メートル)の局所領域での超高速電子制御が可能となり、新たな超高速光エレクトロニクスや物性発現の道が拓かれつつあります。これまで横国大グループでは、テラヘルツ(THz)光パルス[注 1]と原子スケールの空間分解能を持つ走査トンネル顕微鏡(STM)[注 3]を組み合わせることで、極限的な時空間領域で自在に電子を操作する技術を確立してきました[1,2]。この THz-STM 技術は局所領域の電子物性の追跡や制御を可能とすることから、世界中で精力的な研究が行われ始めています。しかし、従来の THz-STM では電子操作の結果として流れる電流を計測することしかできず、超高速で操作された電子が物質中でどのようなエネルギー変換過程を辿るのかを調べることはできませんでした。

一方、理研グループは STM と発光測定技術を組み合わせて豊富な情報を有する光を検出すること[注 5]で、局所領域で生じるエネルギー変換過程を調べ、これまで新たな現象を発見してきました[3-5]。本研究では、横国大グループと理研グループが有する技術を巧みに融合させ、THz 光パルスによって超高速に操作された電子が辿るエネルギー変換過程を発光測定により調べました。

【研究内容と成果】

STM の探針と金属基板間のナノの隙間(ナノギャップ)に THz 光パルスを照射することでトンネル電子[注 2]が超高速に流れます。この探針―基板間を流れるトンネル電子が有するエネルギーが、STM のナノギャップに局在するプラズモン[注 4]の励起に利用されます。本研究では、この局在プラズモンが失活するときに生じる光を検出することで、超高速に操作された電子が辿るエネルギー変換過程を調べました(図 1)。また、実験結果と理論的な解析により、高強度の THz 光パルスがピコ秒(10^{-12} 秒)という極めて短い時間に大量のトンネル電子を流し、その大量に流れた電子が局在プラズモンの励起に関与することを示しました。高強度な THz 光パルスを用いることで、従来の STM 発光分光法では起こりえない条件下での局在プラズモン励起を起こすことができ、新たなプラズモン誘起化学反応の実現が期待される成果を得ることもできました。

【今後の展開】

本研究で開発した THz-STM 発光分光法を発展させることで、金属・半導体・分子など

様々な物質において高い時間精度で電荷注入を行い、電荷注入が引き起こすエネルギー変換過程を極限的な時空間分解能で追跡する事が可能となります。エネルギー変換過程を極限的な時空間分解能で精密計測し理解することは、太陽電池などのエネルギー変換デバイスの高効率化をもたらすのはもちろんのこと、物質に新たな機能を付与すること、新規な物質合成手法を創出すること、量子系を自在に制御する技術を確立することにも繋がることから、新たな学術領域が開拓されていくと期待されます。

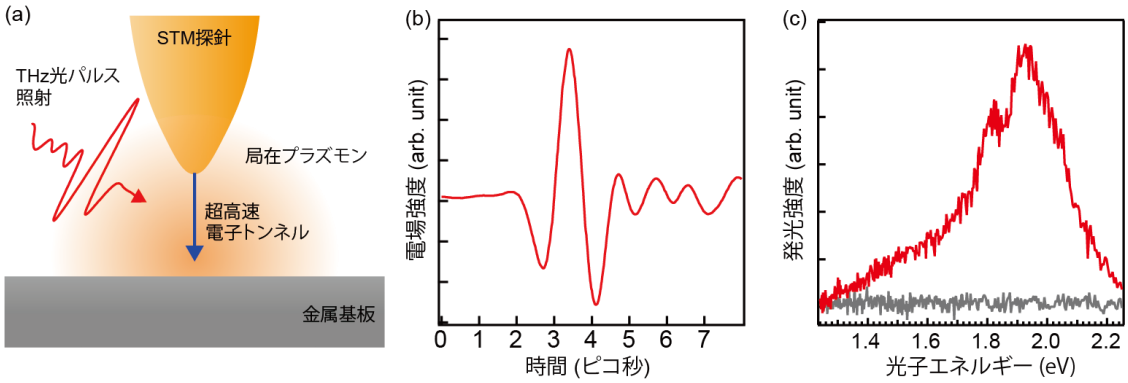


図 1

(a) 本研究の模式図。THz 光パルスを STM ナノギャップに照射し、超高速電子トンネルを引き起こす。このトンネル電子が励起する局在プラズモンからの発光を検出した。

(b) THz 光パルスの波形。超短パルスレーザーを用いて、1 ピコ秒のパルス幅を有するテラヘルツ光を発生させた。

(c) THz-STM 発光スペクトル。THz 光パルス照射時(赤)と非照射時(灰)の発光スペクトル。THz 光パルスが照射されている時、局在プラズモン由来のブロードなピークがスペクトルに現れる。

【発表雑誌】

雑誌名：ACS Photonics

論文題目：Terahertz-Field-Driven Scanning Tunneling Luminescence Spectroscopy

著者：Kensuke Kimura, Yuta Morinaga, Hiroshi Imada,* Ikufumi Katayama,* Kanta Asakawa, Katsumasa Yoshioka, Yousoo Kim,* and Jun Takeda*

(木村謙介、森永悠太、今田裕*、片山郁文*、浅川寛太、吉岡克将、金有洙*、武田淳*)

DOI：10.1021/acsphotonics.0c01755

【用語説明】

注 1：テラヘルツ(THz)光パルス

テラヘルツ光とは、周波数 1 THz (= 10^{12} Hz)、波長 300 μm 程度の領域の光を指す。こ

の周波数帯はエレクトロニクスと赤外光・可視光の周波数の狭間にあり、近年盛んに研究がなされている。本研究では、1 ピコ秒のパルス幅のテラヘルツ光を発生させ(図 1(b))、STM ナノギャップに照射した。

注 2：トンネル電子
非常に微小な世界(量子の世界)において発生する物理現象「トンネル効果」により、電子は、ポテンシャル障壁を貫通し“あたかもトンネルを抜けたかのように”移動することができる。

注 3：走査トンネル顕微鏡(STM)
先端を尖がらせた金属の針(探針)を測定表面に極限まで近づけたときに流れるトンネル電流を利用して、物質の表面を原子レベルの空間分解能で観測する顕微鏡。STM は Scanning Tunneling Microscope の略。

注 4 ：局在プラズモン
金属微細構造の自由電子の集団的な振動のこと。電子の振動に伴い、金属微細構造の周りには強い電磁場が生じる。近年では、プラズモンを利用した光学測定技術の高感度化や、太陽電池・光触媒反応の高効率化が盛んに研究されている。

注 5 ：STM 発光分光法
STM のトンネル電流によって誘起される発光を分光計測する手法のこと。発光の励起源であるトンネル電流が原子スケールの狭い領域に流れることから、局所領域の発光特性を調べることが可能である。波長(エネルギー)、発光強度、発光効率、偏光などの豊富な情報を駆使することで、様々なエネルギー変換過程を明らかにすることができる。

【参考文献など】
1) K. Yoshioka, I. Katayama, Y. Minami, M. Kitajima, S. Yoshida, H. Shigekawa, and J. Takeda, *Nat. Photonics* **10**, 762 (2016).
2016 年 11 月 8 日　横国大プレスリリース「位相制御したテラヘルツ波により、トンネル電子をナノ空間で自在に制御することに成功」
2) K. Yoshioka, I. Katayama, Y. Arashida, A. Ban, Y. Kawada, K. Konishi, H. Takahashi, and J. Takeda, *Nano Lett.* **18**, 5198 (2018).
2018 年 8 月 10 日　横国大プレスリリース「完全位相制御テラヘルツ近接場による超高速ナノ空間電子操作技術を開拓」
3) H. Imada, K. Miwa, M. Imai-Imada, S. Kawahara, K. Kimura, and Yousoo Kim, *Nature* **538**, 364 (2016).
2016 年 10 月 4 日　理研プレスリリース「分子間エネルギー移動の単分子レベル計測に成

功」
4) H. Imada, K. Miwa, M. Imai-Imada, S. Kawahara, K. Kimura, and Yousoo Kim, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 013901 (2017).
2017 年 7 月 5 日　理研プレスリリース「新原理に基づく単一分子発光・吸収分光を実現」
5) K. Kimura, K. Miwa, H. Imada, M. Imai-Imada, S. Kawahara, J. Takeya, M. Kawai, M. Galperin, and Y. Kim, *Nature* **570**, 210 (2019).
2019 年 6 月 6 日　理研プレスリリース「有機 EL の新たな発光機構を発見」

【本研究に対する問い合わせ先】

横浜国立大学 大学院工学研究院　教授　武田 淳
電話：045-339-3953　E-mail：jun@ynu.ac.jp

理化学研究所 開拓研究本部 主任研究員　金 有洙
電話：048-467-1962　E-mail：ykim@riken.jp

【その他問い合わせ先】

横浜国立大学　総務企画部学長室　広報・渉外係
電話：045-339-3027　E-mail：press@ynu.ac.jp

理化学研究所　広報室　報道担当
E-mail：ex-press@riken.jp