

戦略的創造研究推進事業 CREST  
研究領域「物質現象の解明と応用に資する新しい  
計測・分析基盤技術」  
研究課題「フェムト秒時間分解走査プローブ顕微  
鏡技術の開拓と極限計測」

## 研究終了報告書

研究期間 平成16年10月～平成22年3月

研究代表者: 重川 秀実  
筑波大学大学院・数理物質科学研究科、教授

## § 1 研究実施の概要

半導体素子の応答や、生体内での信号伝達、化学反応など、多くの興味深い、また重要な現象は、数十ナノメートル～分子スケールで、また、数十ピコ秒～フェムト秒に至る領域で展開されている。近年、こうした半導体・量子構造や生体材料・単一分子の物性(機能)を組みあわせることで、多元的な機能を有する高速デバイス等、新しい機能を創成・開発する試みが進められている。しかし、構造が微細化するにつれ、システムの中での各要素の特性、さらには、各要素の中で、単一原子レベルの欠陥や微小構造によるダイナミクスの僅かな変調や揺らぎがマクロな現象に大きな影響を与えるだけでなく、物性(得られる機能)そのものを選択・支配する要因になる。従って、こうした状況の中、引き続き新しい機能を開拓し実現していくためには、(1)ナノスケールで量子構造を制御・構築する技術を確認することとあわせ、(2)作製されたシステムの各要素の構造・機能や要素間での相互作用を、例えば動作下、ナノスケールの揺らぎのレベルで正しく評価する技術・手法を確認し、それらを両輪として研究・開発を推し進めることが必要不可欠である。しかし、こうした要請にもかかわらず解決すべき技術的課題は多く、解析は一般にマクロに平均化された特性や、孤立した単一の要素を対象とする結果を基礎としており、局所量子ダイナミクスをシステムの中でとらえた結果に基づく議論、科学としての展開は、未だ、端緒についたばかりである。

本プロジェクトは、走査プローブ顕微鏡の優れた空間分解能と超短パルス光によるエネルギー及び時間領域での高い選択性・分解能を融合することにより、時空両領域での極限的な計測・制御・物性実験が可能な装置・手法を開発し、ナノスケール領域での新たな科学技術の展開をはかることを目的とするものである。

2つの異なる分野の先端技術を融合するためには、個々の場合には隠れていた多くの問題が顕わになる。そのため、走査トンネル顕微鏡(STM)の発明直後から多くの第一線の研究者が試みにてきたにもかかわらず、これまで実現されることがかなわなかった。我々は、新しい測定の仕組みを導入することで、両先端技術の融合を可能にし、(1)サブピコ秒からマイクロ秒を越えた広い時間領域に渡る光誘起現象に対し、(2)トンネル電流を用い、(3)微弱な時間分解信号を短時間で計測し、ナノスケール・実空間で可視化することが可能な、「新しい顕微鏡」の基盤技術・装置開発に成功した。原理的には、超短パルスレーザーのパルス幅で決まる時間分解能と、STMの空間分解能を併せ持つことになる。本プロジェクトでは、140fsとサブnmの時間・空間分解能を確認した。

本手法は、超短パルス光を利用したポンププローブ法をナノスケールで実現した顕微鏡であるが、トンネル電流をプローブとすることで、単に励起状態の緩和過程だけでなく、半導体中キャリアの拡散やドリフトへの局所ポテンシャルや原子レベルの欠陥準位の影響など、これまででない、新しい情報を得ることも可能になった。

## § 2. 研究計画に対する成果

### (1) 当初の研究構想

当初計画の概略を下記表に示す。

項目	平成16年度 (6ヶ月)	平成17年度	平成18年度	平成19年度	平成20年度	平成21年度 (12ヶ月)
光励起系開発	←			→		
マルチ計測系開発	←			→		
解析法の開発		←		→		
データ取得		←			→	
データ解析		←			→	
結果の一般化					←	→
まとめ						←

原理的には、STMの探針直下を光学的なポンププローブ法と同様の仕組みを用いて超短パルス光で照射し、STMによりトンネル電流の変化を計測することで、ポンププローブ法の高い時間分解能とSTMの高い空間分解能をあわせて実現する。しかし、2つの異なる分野の先端技術を融合するためには、個々の場合には隠れていた問題が顕わになり、乗り越えるべき課題となる。走査トンネル顕微鏡(STM)の発明直後から多くの第一線の研究者が試みてきたにもかかわらず、これまで実現されることがかなわなかった理由もそこにある。我々は、新しい仕組み(遅延時間変調法)を導入・整備することで、両先端技術の融合を可能にし、超高速現象を実空間・ナノスケールで可視化する技術の確立を目指した。

まず、それぞれのシステムを整備した後、両者を組み合わせることを方針とし、その際、両先端技術のレベルを保ちながら新しい仕組みを作り上げるために、(1)熱膨張回避、(2)光軸の安定化、(3)S/N比の改善など、逐次、結果をフィードバックしながら、新しい考えを導入し開発を進めることを計画した。研究当初の計画は、機械的な遅延時間変調を基本とし、如何にして、安定で高速な計測が可能となるかを念頭に作成したものである。5年間、ほぼ、当初の計画に沿って遂行したが、次項目で述べるように、途中、新しいアイデアの導入により、新たな展開が生まれ、格段に進んだ成果を得ることが可能となった。

また、本技術を適用する対象として、主に半導体試料を用いたが、時間分解STMを適用し解析を進めるに際し、単一欠陥による局所ポテンシャルの変調や、局所ポテンシャル中のナノスケールでのキャリア分布の情報が必要となる。そこで、周辺技術とし「光変調トンネル分光法」による局所ポテンシャル可視化技術や、STM発光による局所電子構造解析技術の開発を進めることを計画した。

## (2) 新たに追加・修正など変更した研究構想

先に述べたように、2つの異なる分野の先端技術を融合するためには、個々の場合には隠れていた問題が顕わになり、その解決が重要な課題となる。最大の障害は、「非常に微弱な信号を計測するために、ロックイン検出法を用いなくてはならず、例えば、通常の励起光強度変調では STM 探針や試料の熱膨張による変位電流が主成分として計測されてしまう」ということであった。

1. 我々は、まず、「遅延時間変調法」を適用することで、この問題を解決し、光スポットトラッキング等の手法を開発することで安定した計測の実現を図った。しかし、機械的な光路差制御による遅延時間変調では、(1) 遅延時間を大きく取れない(遅い緩和過程を扱えない)ため、光誘起過程の時間変化を正しく計測・解析することが難しい。また、異なる特性(寿命等)を持つ材料を組み合わせた構造を対象とした解析が困難。(2) 光軸がずれる(STM 探針直下に集光することが必要で、通常の光軸あわせに比べてはるかに影響が大きくなる)。(3) ロックイン検出で得られるのは信号の遅延時間に対する微分値で、これを積分することで時間変化を求めるため信号の大きさの絶対値が求まらない。(4) 機械的な変調では周波数を大きくとれないため、S/N 比が悪く、測定時間が非常に長いため、微弱信号の計測が難しいこととあわせて、時間分解信号の空間マッピングが難しい、といった問題が現れてきた。
2. 様々な検討の末、新しいアイデアである「デジタル的な遅延時間制御」を導入することで、これら障害を取り除くことに成功した(国際特許出願)。機械的な制御では困難であった遅延時間を速く大きくふることが可能となり、システムの S/N 比が 100 倍改善(測定時間は 1/10000 に短縮)されることで、原理的には超短パルス光のパルス幅(フェムト秒領域)からマイクロ秒を越えた広い時間変化を計測可能な顕微鏡が実現され、多様な材料・構造を持つ試料を対象として時間分解信号をナノスケールでマッピングし、高速現象を可視化することが可能になった。

## (3) 達成状況

スケジュール的には、ほぼ、計画通り遂行し、追加研究費により開発した『パルスピッキング・デジタル変調による遅延時間制御』の実現により、当初の予定より格段に進んだ成果を得ることができた。

1. 測定範囲は、パルス光幅からマイクロ秒を越えた広い範囲にわたり、異なる寿命を持つ多成分からなるナノ構造を対象とした計測が可能となった。

2. また、S/N 比が 100 倍改善されたことで、微弱な信号を計測可能になったことに加え、同様の信号であれば測定時間は 1/10000 となり、時間分解信号を空間マッピングすることが可能となった。これにより、ナノスケール超高速ダイナミックスの可視化が実現した。また、パルスピックアップで問題となる光強度の減少を回避する方法を開発した。
3. 研究当初は、マルチプローブの導入により、多箇所同時測定等を行い時間・空間分解能を高める予定であった。しかし、上記『パルスピックアップ・デジタル変調による遅延時間制御』の開拓により、単一探針でも予想を遙かに超えた良いデータが得られることになり、アドバイザーの勧めもあって、後半は、新しい手法の展開に主力を注いだ。

### §3 研究実施体制

(○：研究代表者または主たる共同研究者)

#### (1)「重川」グループ

##### ①研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	重川 秀実	筑波大学 数理物質科学研究科	教授	H16.10～
	武内 修	同上	講師	H16.10～
	大井川 治宏	同上	講師	H16.10～
	谷中 淳	同上	研究員	H17.10～
	寺田 康彦	同上	研究員	H18.4～
	吉田 昭二	同上	研究員	H18.4～
	金澤 研	同上	研究員	H19.4～
	保田 諭	同上	研究員	H17.4～H17.9
	岡田 有史	同上	研究員	H19.4～H20.7
	石井 啓祐	同上	学生	H20.4～
	大久保 淳史	同上	学生	H20.4～
	黄 慧	同上	学生	H20.9～
	青山 正宏	同上	学生	H16.10～H18.3
	大島 隆治	同上	学生	H16.10～H18.3
	菊池 純一	同上	学生	H16.10～H18.3
	生頼 義久	同上	学生	H16.10～H18.3
	徐 茂杰	同上	学生	H20.4～H21.3
	石橋 聡史	同上	学生	H20.4～H21.3
	海老根 裕太	同上	学生	H20.4～H21.3
	大川 直広	同上	学生	H20.4～H21.3
	瀧ヶ崎 優	同上	学生	H20.4～H21.3
	中村 圭佑	同上	学生	H20.4～H21.3

##### ②研究項目

- 超高速プローブ計測技術の開発

(2)長村グループ

① 研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	長村俊彦	(株)ユニソク開発研究所	部長	H16.10～
	宮武 優	同上	主任研究員	H16.10～H19.3
	山本雄高	同上	技術員	H17. 4～H19.3
	戸田治巳	(株)ユニソク生産技術部	部長	H17. 4～
	水野博之	同上	技術部長	H18. 4～H19.3
	竹田幸治	同上	技術員	H17. 4～H18.3
	塩野正幸	同上	技術員	H17. 4～H19.3

②研究項目

- ・ マルチ計測光励起プローブシステムの開発

## § 4 研究実施内容及び成果

### 4.1 超高速プローブ計測技術の開発(筑波大学 重川グループ)

#### (1) 研究実施内容及び成果

本プロジェクトは、走査プローブ顕微鏡法の優れた空間分解能と超短パルス光・ポンププローブ法のエネルギー及び時間領域での高い選択性・分解能を融合することにより、時空両領域での極限的な計測・制御・物性実験が可能な装置・手法を開発し、ナノスケール領域での新たな科学技術の展開をはかることを目的とするものである。

2つの手法は異なる領域で極限化されたものであるため、両者を融合するには個々の技術を単独で用いる際には隠されていた問題点が顕わになり、多くの試みにもかかわらず、これまで実現することはかなわなかった。我々は、「ポンププローブに用いる2つの超短パルス光の間の遅延時間を制御する新しい仕組み」を導入することでシステムのS/N比を大幅に改善し、両先端技術を融合して微弱な時間分解トンネル信号の計測、及びその空間マッピング、即ち、「超高速ダイナミクスの可視化」が可能な新しい顕微鏡法を開発することに成功した。以下に詳細をまとめる。

#### 1. 測定原理

図1は、光学的ポンププローブ法(OPPR 法)の概略を示したものである。超短パルス光列のそれぞれのパルスを2つの経路に分け、ある遅延時間  $t_d$  を持たせて再び同軸に乗せることでパルス対の列とする。遅延時間は光路差を調整することで制御される。最初のパルスは試料を励起することに使われポンプ光と呼ばれる。例えば、二つめのパルス（プローブ光）の反射率は、

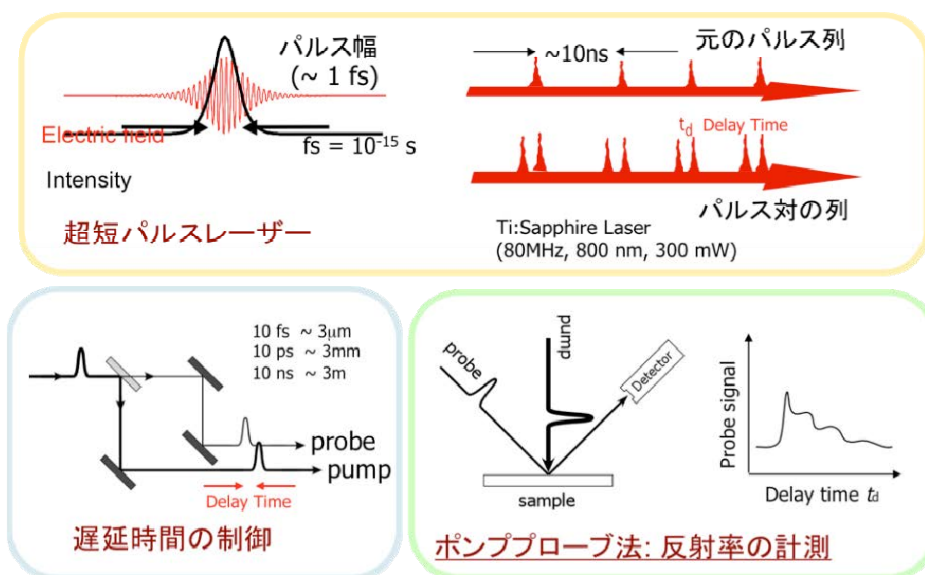


図1 光学的ポンププローブ法の原理

試料の状態によって影響を受けるため（吸収飽和など）、プローブ光の反射率を遅延時間  $t_d$  を変えて測定することで、ポンプ光により励起された試料の電子状態の緩和過程がプローブ光の反射率の変化を通して観察される。この時、時間分解能はパルス幅によって決まりフェムト秒の領域にある。

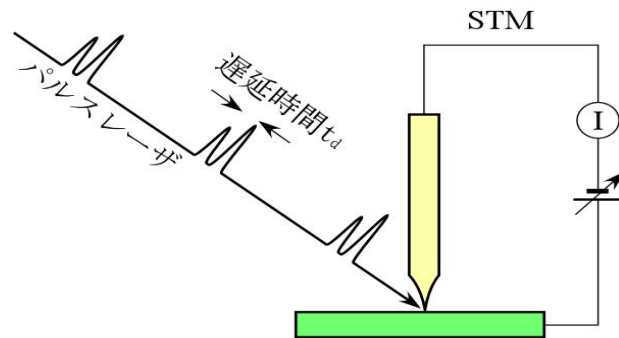


図 2 遅延時間変調型フェムト秒時間分解 STM (Shaken pulse pair excited STM:SPPX-STM) の概略図

新しく開発した「遅延時間変調型フェムト秒時間分解 STM (Shaken pulse pair excited STM:SPPX-STM)」では、探針直下の試料部分を OPPr 法と同様に遅延時間を持たせたパルス対で照射するが(図 2)、パルス対はいずれも試料を励起することに使われる。即ち、測定するのはプローブ光の反射率ではなく STM のトンネル電流で、遅延時間

を変化させ対応するトンネル電流の変化が信号として取り込まれる。2つのパルスにより誘起されるトンネル電流の総和が遅延時間に依存すれば、OPPr 同様、遅延時間に依存したトンネル電流の変化が系の光誘起現象の緩和過程についての情報を与えることになる。時間分解能はパルス幅で決まり、空間分解能はプローブがトンネル電流であることから原理的には STM の原子レベルの分解能を引き継ぐことになる。

OPPr 法, SPPX-STM ともに得られる信号は微弱であり, S/N 比を上げて測定するため, 励起光を変調し同じ周波数で振動する信号成分を取り出すロックイン検出法が用いられる。

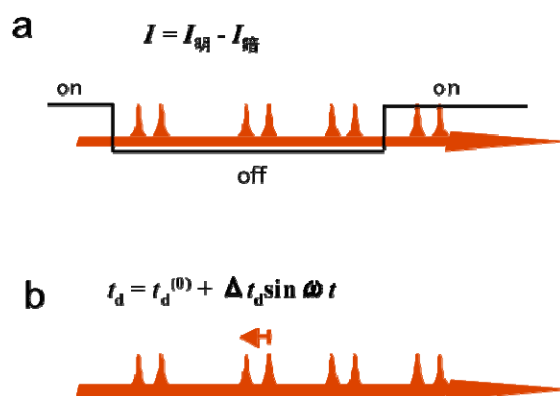


図3 ロックイン検出の為の光励起変調の2つのタイプの模式図。(a)強度変調方式, と(b)遅延時間変調方式。

OPPr 法の場合, 通常, 励起光の強度を変調する方法がとられるが(図 3a), SPPX-STM に同様の手法を用いると, 探針や試料が熱膨張・伸縮を起こし, それに伴うトンネル電流の変化が雑音となって目的とする信号を検出することを妨げる。これは, トンネル電流が試料・探針間の距離に指数関数的に依存し, 0.1nm の距離の変化がトンネル電流を一桁変化させることによる。そこで, SPPX-STM では, 励起光の強度を変



調する代わりに遅延時間を変調させることで（図 3b）全体としての光の強度を保つことによりこの問題を回避した。

## 2. 光励起位置の制御

光 STM では、探針直下を光励起するが、先に述べたように、信号が非常に微弱であることに加え、探針や試料の熱膨張は信号に大きな影響を与えるため、励起光のスポット位置の変動は極力抑えなくてはならない。しかし、実際には、レーザーの揺らぎや遅延時間を変調する構造等の変化により、測定中に励起光のスポット位置がずれてしまうことが明らかになった。そこで、光軸をモニターし調整する仕組みを導入した。

図4は、試料上の目的とする場所に STM 探針の位置を固定するために用いられている「アトムトラッキング」にちなみ、『光スポットトラッキング』と名付けた仕組みで、2つのダイオードで光軸の位置と角度を監視し、2つの鏡の角度をフィードバック制御することで、数  $\mu$  ラジアン程度の高精度で光軸を安定化させている。測定の再現性、長時間測定、波長依存性の解析などには、必要不可欠の仕組みである。図4下にモニターの例を示す。これにより、長時間の測定において、より安定した計測が可能になった。

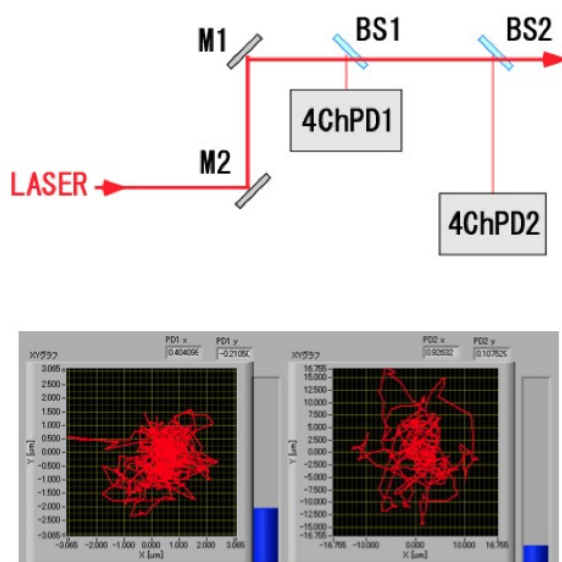
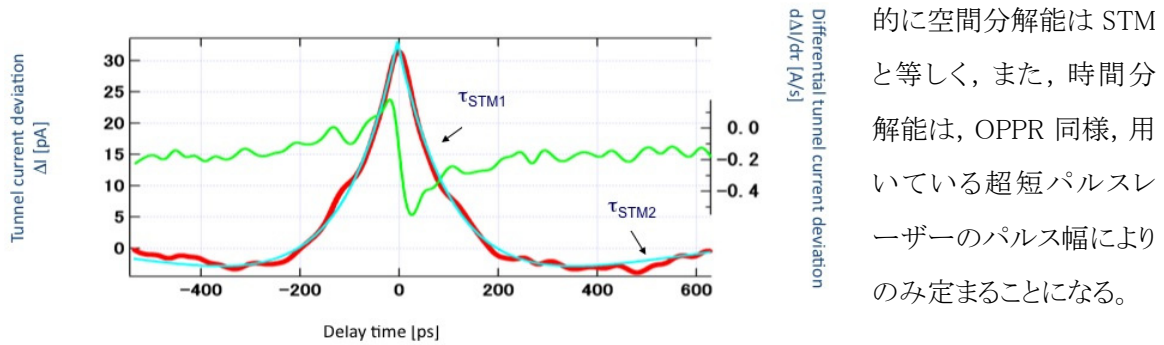


図4 光スポットトラッキングのシステム（上）とスポット位置のモニター例

### 3. 測定結果の例

以上述べてきた、遅延時間を変調する仕組みと、光軸を安定化させる仕組み等の導入により、光誘起に伴う超高速過渡現象の時間分解信号をトンネル電流で計測することに成功した。

図5は、こうして得られた結果の例である。試料は GaNAs (N を混入させることで寿命を短くしてある) で、光照射により励起されたキャリアの超高速緩和過程 (メカニズムの詳細は後述) がトンネル電流により計測されている。少し後になるが、OPPR 法により得られた時間分解信号との一致は



良い。トンネル電流を用いていることから、原理的に空間分解能は STM と等しく、また、時間分解能は、OPPR 同様、用いている超短パルスレーザーのパルス幅によりのみ定まることになる。

図5 ミラー変調法による SPPX-STM 信号

### 4. 遅延時間変調法の

#### 課題

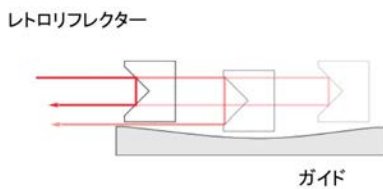


図6 ミラー変調法の問題点

図5に示したように、新しい顕微鏡を用い、半導体中の超高速キャリアダイナミクスをトンネル電流で計測することに成功した。しかし、図1の「遅延時間の制御」の箇所に記載したように、ミラー型の遅延時間制御では、10fs で  $3\mu\text{s}$ 、10ns で 3m の光路差を持たせることが必要となる。OPPR では、広い領域の情報を得ることで目的が達成されるため、

例えば、設定条件を変更して測定を継続することも可能であろうが、ナノスケールで異なる寿命を持つ試料を対象とした測定を目的とする SPPX-STM では、こうした光路差の調整による遅延時間の制御で、広い遅延時間にわたり、安定した信号を得ることは不可能である。ミラー型では、変調を行う際に光軸のずれが生じ(図6)、安定したトンネル電流信号の計測を妨げる。また、同様の光軸のずれなどの問題から、遅延時間変調の周波数を上げることも難しく、S/N 比が非常に低下し、微弱な信号の計測、ひいては短時間での測定が困難で、時間分解信号の空間マッピングを実現することはなかなか難しい。図5は、光スポットトラッキング他、いろいろと改良を重ねた結果であるが、1ns 程度の現象を追うのが精一杯の状況であった。しかし、図に見られる様に、信号には 1ns を越

えて緩和する現象が現れ始めており、高速領域の正確な解析の他、それぞれの物理過程を深く理解する為に、新しい手法の導入が必要不可欠であることを示している。

### 5. 新しい遅延時間変調法

図7に、新しい開発の流れを示す。新しい手法は色を変えて表示した部分になる。先に述べた様に、両技術を融合させるためには微弱なトンネル電流を信号として取り出すことが必要不可欠で、S/N 比を向上させるためにロックイン検出を行う。例として3つの方法をあげた。まず、通常の「ポンプローブ光強度変調型・ポンプローブ測定法」は、熱膨張の問題などが生じるため STM との組み合わせは不可能である(図中左上側の X 印)。

こうした問題点を取り除くために、我々は、光強度を変化させない「遅延時間変調型・ポンプローブ測定法」を導入することで SPPX-STM の開発を進めた。まず、光路差を機械的に制御する「ミラー移動方式」を用いて STM との融合を実現した。光軸を自動調整する機構や、長い光路差を取り出す工夫を行い、図5に示したように、GaNAs 試料からのサブ ps ー数 100ps 領域の光励起キャリアダイナミクスをトンネル電流として取り出すことに成功した(図中○印)。しかし、測定には熟練を要し、また、信号強度としても多様な試料を計測するには十分な性能とは言えなかった。

その間、他の研究グループにより2つのレーザー発振器を異なる繰り返し周波数で発信させポン

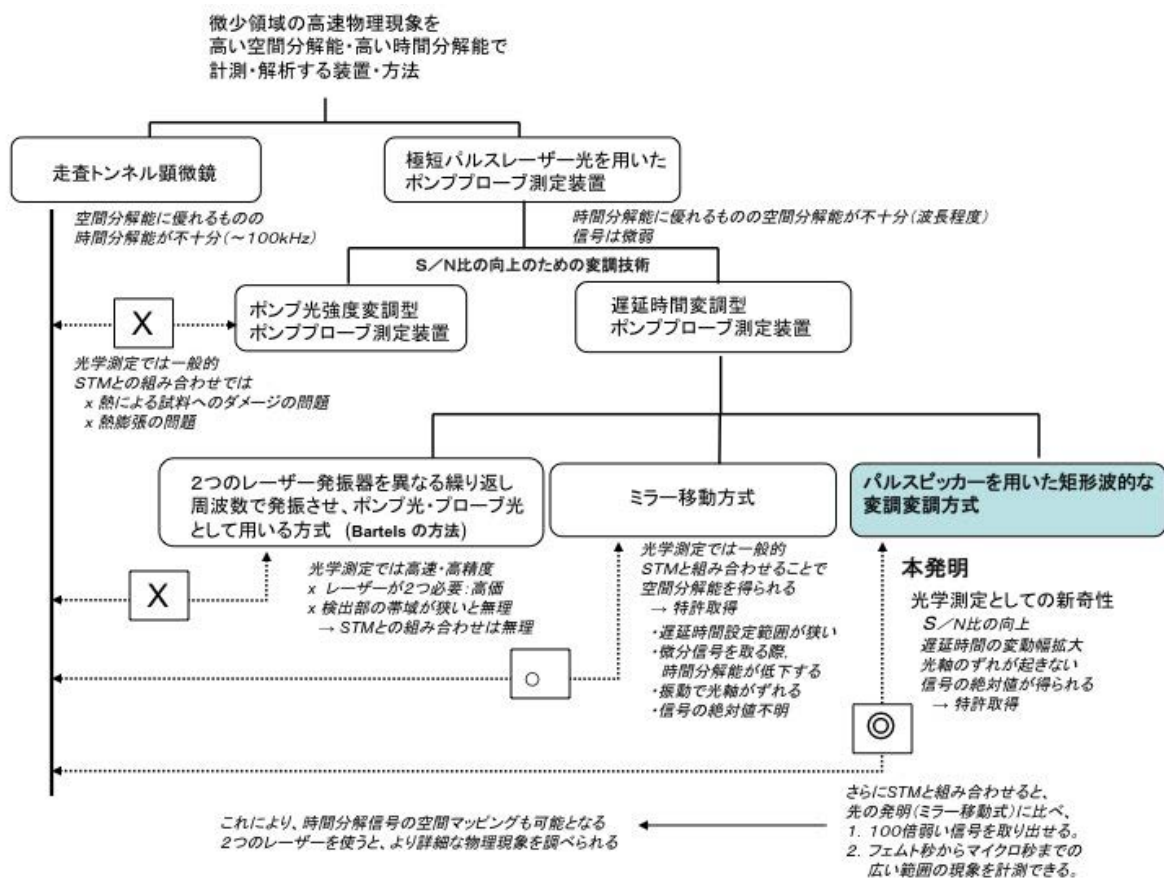


図7 開発の流れ。右端の色異なる項目に対応する部分が新しく開発された手法。

プローブ光として用いる方法が開発されたが、検出部の帯域が狭いと困難で、これもSTMとの組み合わせは無理である(図中左下側のX印)。

そこで、こうした点を改良することを目的として検討を進めた。追加資金を利用し、2つのパルス光を自由に選択して広い範囲にわたり遅延時間を設定して計測することが可能な方法を導入し開発を行った結果、当初の予定を超えて、安定した信号を短時間で計測することが可能で、フェムト秒からマイクロ秒にわたる広範囲の過渡応答を空間マッピングし解析することができる「新しい顕微鏡」の基礎を確立することに成功した(図中◎印)。

図8は、こうして得られたシステムの概略図である。模式図に示すように、パルスピックを用い、パルス光列から選択的にパルスを透過することでデジタル的に遅延時間を変調する。本研究で用いた、制御系、解析ソフトなどは全て手作りである。図では、2つのレーザーを使用する例が描いてあるが、先の説明のように、一つのレーザーから出たパルス列の個々のパルス光を、半透明鏡を用いて2つのパルスに分け、遅延時間を持たせて再び同軸に乗せることでパルス対を作製し用いることも可能である。これらは、光強度や励起光間の干渉の効果などを考慮し選択する。

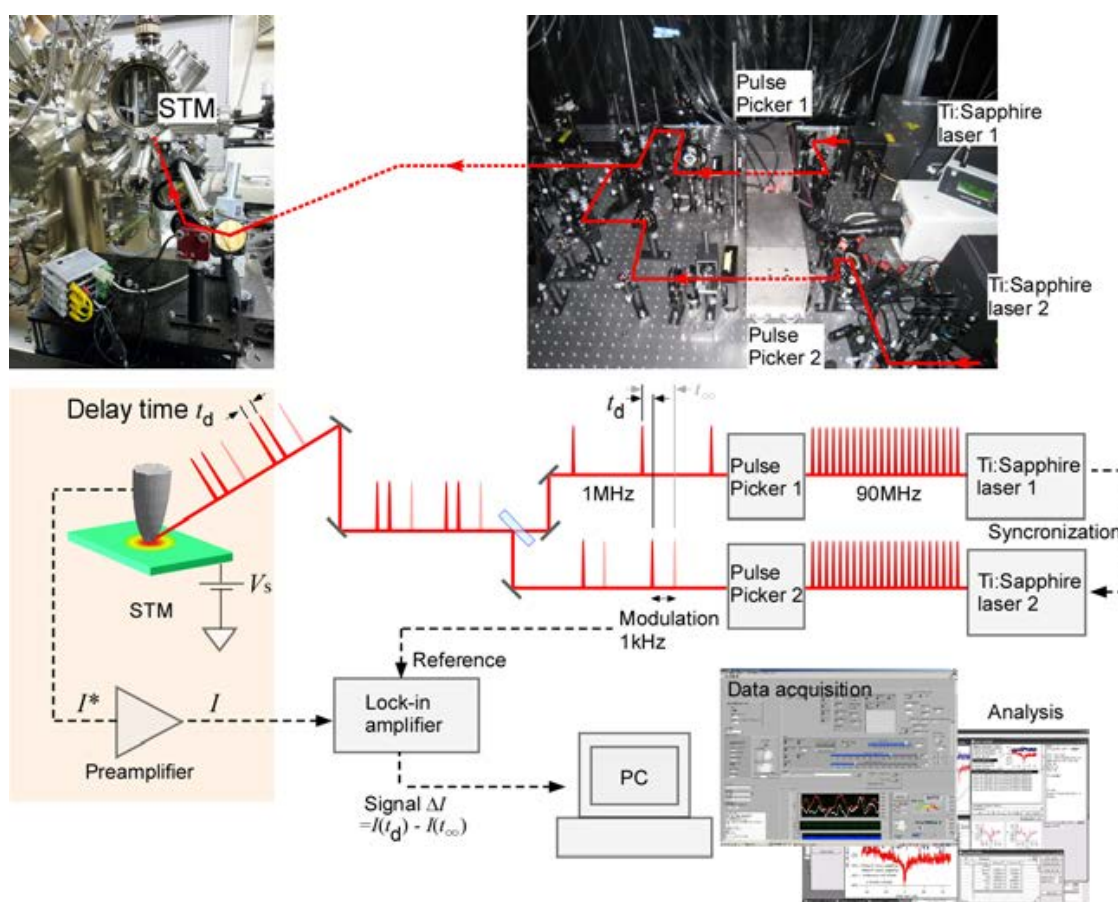
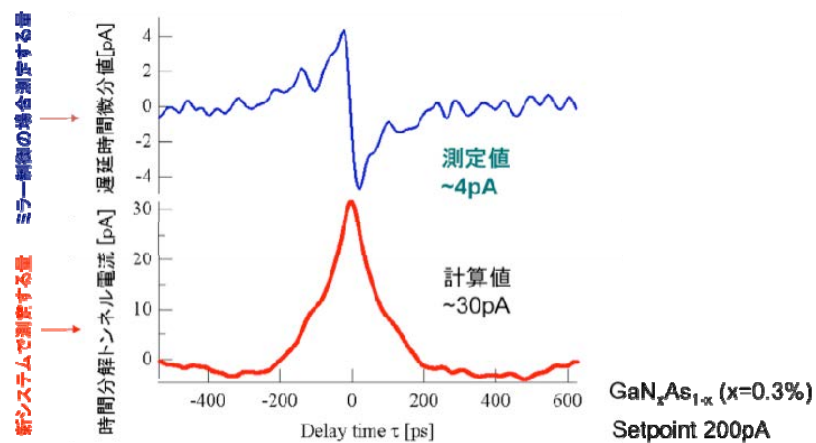


図8 SPPX-STM システムの概略図

## 6. S/N 比の改善について

新しく導入した「パルスピックアップ法」により、(1)大きな遅延時間の変調が可能になったことで、絶対値測定が可能となり、信号レベルがミラー制御の場合の10倍に(図9)、(2)高速変調が可能となったことで、ノイズレベルが1/10に(図10)、あわせて100倍のS/N比が実現された。この結果、微弱なトンネル電流を短時間で計測することが可能となり、後で述べるように、SPPX-STM 信号の実空間マッピングが可能となった。

### - 信号レベル

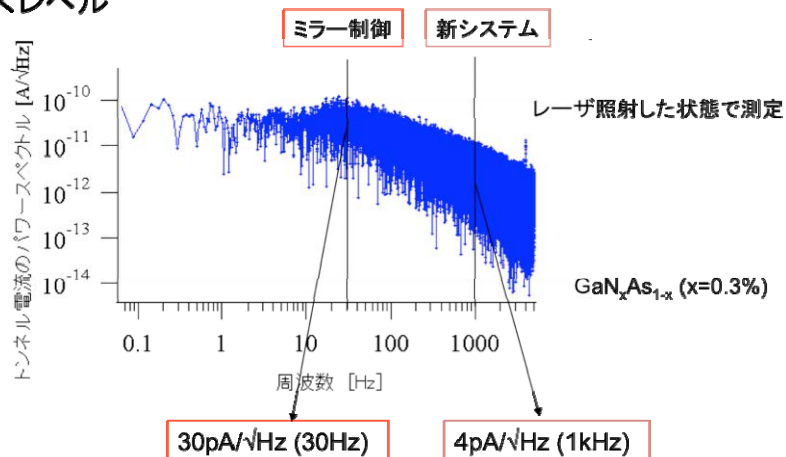


30pAの信号に対して、微分値では4pAの検出が必要

新システムの信号レベルはミラー制御の場合の10倍程度

図9 大きな変調幅が可能になったことによる信号レベルの増加

### - ノイズレベル



-ノイズレベルは約1/10

→あわせて、S/Nは100倍に

図10 高速変調によるノイズレベルの改善

## 7. 広い遅延時間計測

先に述べたように、パルスピッキング法の導入により、遅延時間を広い領域に渡って変化させることが可能になった。短い方は原理的にパルス幅により決まる(現在使用しているレーザーは 130fs)が、 $\mu\text{s}$  を越えた長い寿命も含めた幅広い試料を対象とした計測が可能になる。今後、ナノスケールの機能素子・材料開発において、例えば、異なる寿命を持つ材料からなるナノ構造のキャリアダイナミクスを解析することは必要不可欠であるが、S/N 比の改善とあわせて、本手法により、こうした要求に応える新しい顕微鏡が実現された。

## 8. SPPX-STM の時間分解能

新しく開発した SPPX-STM の時間分解能は、(1) 光学パルス幅、(2) 遅延時間の精度、(3) ロックインアンプの時定数、(4)その他の要因、によって決まる。まず、(1)の光学パルスが有限のパルス幅をもつため、二つのパルスの重なり時間(自己相関幅  $T_0$ )程度、時間分解能が低下する。現行システムの発振器のパルス幅は 140fs で、 $T_0 \sim 200$ fs 程度となる。次に、(2)の遅延時間の精度は、主に光学ライン内に配置した反射鏡の位置制御の精度によって決まる。これはおよそ 10fs 程度であり、現在のシステムでは、他に比べて無視できるほど小さい。また、(3)のロックインアンプのローパスフィルター処理によっても時間分解能が低下する。これによる時間分解能の低下は、ロックインの時定数を  $T_c$ 、遅延時間のスロースキャン速度を  $v$ とすると、 $vT_c$ 程度である。この値は、実験条件によって  $T_0$  以下に調整することができる。典型的には、 $T_c=300$ ms、 $v=0.54$ ps/s、つまり  $vT_c=160$ fs 程度である。これら三つの因子以外にも、例えば物理系の応答遅れ等、時間分解能を低下させる因子があり得る。これを(4)その他の因子とする。そこで、実験データを用いて、この因子の大きさを見積もってみる。

図 11A に示すのは、遅延時間(delay time)を三角波的に繰り返し走査したときの SPPX-STM 信号 ( $\Delta I$ ) の測定例である。遅延時間を増加させたとき(upward scan)と減少させたとき(downward scan)に分け、それぞれの場合について平均をとっている。(upward と downward scan の場合で、ピーク位置が異なるのは、(3)ロックインアンプのローパスフィルター処理のためである。)これら二つのスペクトルを、前述の4つの因子を考慮したモデル関数を使ってフィッティングすることを考える。モデル関数は、以下の手続きで作る。

- A) 試料の応答関数を指数関数的な減衰関数と仮定する。
- B) この応答関数を、ガウスパルス(実効的なパルス幅を  $T_{\text{eff}}$  とおく)にたたみ込む。この実効パルス幅で、前述の因子 4 による効果を表すことにする。
- C) さらに、ロックインのローパスフィルター処理のインパルス応答関数とたたみ込む。(これで因子 3 の効果を含ませることができる。)

まず、 $T_{\text{eff}}$  を  $T_0$  と同じ 200fs に設定する。図 11A 下のグラフ中、太線で示したものが、上の手続きでフィッティングした結果である。このとき、フィッティング誤差(図 11A 上)は小さく、雑音レベル程度であり、フィッティングはうまくいっている。さらに因子 4 の上限を見積もるため、 $T_{\text{eff}}$  を増やしながらか同様にフィッティングし、そのときのフィッティング誤差の rms 値を  $T_{\text{eff}}$  の関数としてプロットした(図 11B と 11C: 図 11C は図 11B の一部を拡大したもの。)フィッティング誤差は  $T_{\text{eff}} < 200$ fs(= $T_0$ )のときは小さいが、 $T_{\text{eff}}$  が大きくなるにつれて増加してしまう。

以上の考察から、 $T_{\text{eff}} \sim T_0$ とみなすことができる。つまり、SPPX-STMの時間分解能は光学パルス幅(因子 1)のみによって決まり、今の装置では、140fs である。この値は、より短いパルスを用いることで更に改善される。

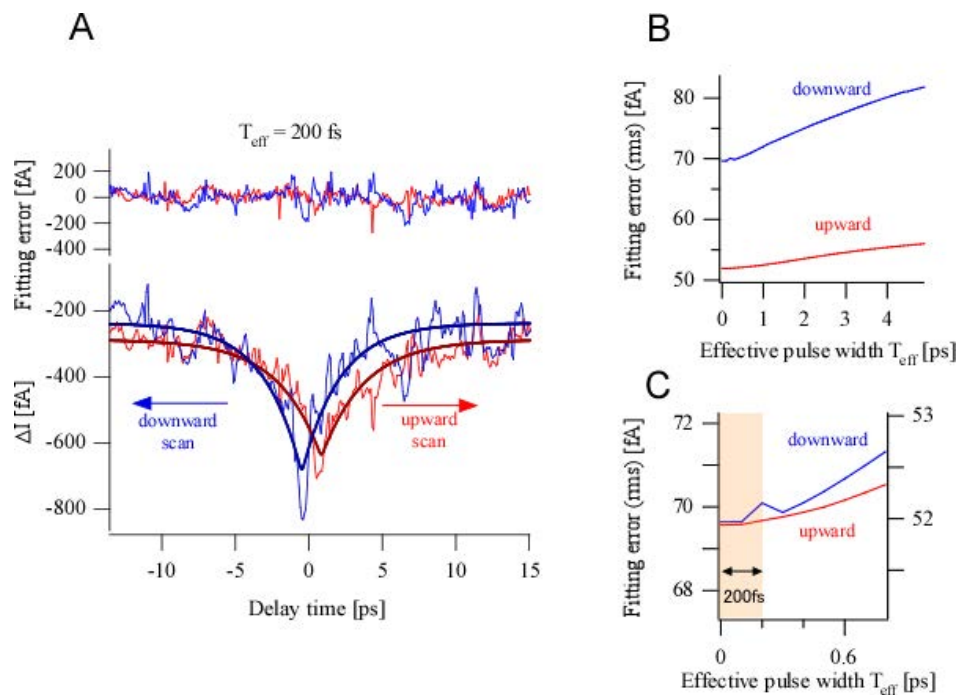


図 11 A : 時間分回信号のフィッティング。B:他の要因による有効パルス幅を増加させたときの誤差の変化。C:Bの拡大図。



## 9. 新しい遅延時間変調法による測定結果の例

図 12 は GaAs, AlGaAs, LT-GaAs (低温成長 GaAs) の異なる寿命を持つ材料からなる超構造に対し、時間分解測定が可能であることを示す結果である。使用したレーザーの出力波長は 800nm で、AlGaAs 部分ではエネルギーギャップより励起エネルギーが小さく、信号が現れないことが期待される。図のグラフは、それぞれの材料の場所で得られた SPPX-STM の信号である。GaAs, LT-GaAs の信号からフィッティングより得られた緩和過程の減衰は、それぞれ、6.1ns, 4ps となった。図中に記載した lifetime は、OPPR により得られた寿命で、図 13 にトンネル電流による信号と、OPPR 方により得られた信号をあわせて示してある。SPPX-STM により得られた減衰定数は OPPR 方により測定された値、6ns, 1.5ps と良く一致する (OPPR の結果は平均的な信号であり、SPPX-STM の結果は局所的な値なので、完全に一致はしない)。

こうした測定を二次元的に行い、得られた時間分解信号をマッピングすれば、キャリアダイナミクスの実空間・ナノスケールでの可視化が実現されることになる。

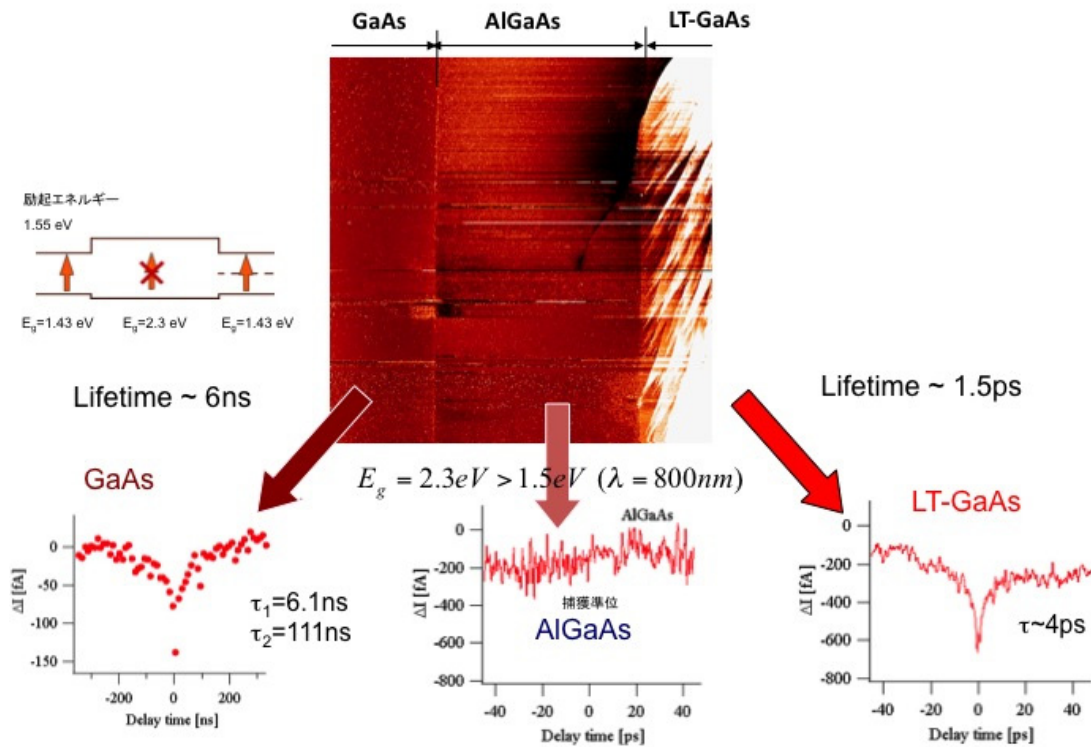


図 12 GaAs/AlGaAs/LT-GaAs 超構造の時間分解 STM 信号

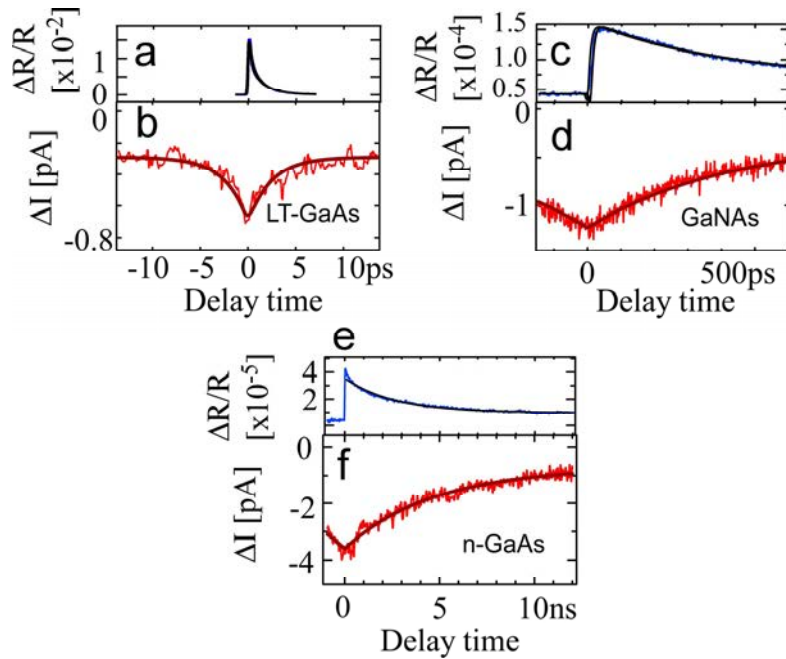


図 13 SPPX-STM と OPPr の結果の比較。

## 10. SPPX-STM のメカニズム

SPPX-STM の信号は、OPPr のキャリアの再結合寿命、および、図 5 の遅い成分（後述のように表面光起電力の減衰定数）に対応する時間スケールの変化を見せた。測定原理に対する理解を深めるため、そして、本手法を適用できる新たな測定対象を探すため、パルスペア励起時間分解 STM法で測定できる物理現象の範囲について包括的な考察を行った結果、パルスペア励起時間分解 STM法で測定可能な物理系に課せられる基本的な条件は、(1)測定対象への光照射でトンネル電流が変化すること（光応答性）。(2)光応答が可逆的であり、十分な時間が経過すれば光照射前と完全に同じ状態に戻る。こと。(3)光照射量に対するトンネル電流変化量に非線形性があること。の3つで、原理的には非常に広い範囲の測定対象に対して有効な手段であることが明らかになった。

試料の光応答の非線形性については、(a) 試料の物性値自体が光強度に対して非線形性を持つ場合と、(b) 物性値自体は光強度に対して線形に応答するが、トンネル電流が物性値に対して非線形に応答する場合、の2つを分けて考える必要がある。半導体試料を例に取れば、パルス光照射による光キャリアー生成密度は照射強度が非常に強い部分で飽和的な非線形性を見せる。これは、非常に高濃度に光キャリアーが生成することにより、占有状

態の空乏化や、非占有状態の占有化が起き、新たな光キャリアー生成を阻害する（ブリーチング効果）ことによる。このような非線形性は(a)に分類される。一方で、光キャリアーは表面光起電力を通じてトンネル電流に影響を与えるが、半導体表面の光起電力は光キャリアー密度に対して非常に強い非線形性を持つ（近似的には光起電力は注入キャリアー密度の対数に比例する）。さらに、光起電力はSTMトンネルギャップの電流・電圧 ( $I-V$ ) 特性（半導体試料では強い非線形性を示す）を通じてトンネル電流に影響を及ぼす。

話を単純化するため、(a)の非線形が存在せず、(b)の非線形性のみが存在する場合について検討を行った結果を示す。ある試料パラメータ  $n$  は（たとえば光キャリアー密度、あるいはフォノンの振幅など）光パルスの照射により、照射強度にちょうど比例するだけ変化を起し、その励起状態は時定数  $\Delta t$  を持って指数関数的に減衰して基底状態に戻るとする： $n(t) = N \exp(-t/\Delta t)$ 。完全に最初の状態に戻る前に2つ目の光パルスが照射された場合にも、試料パラメータはパルスが単一で試料を励起した場合と同じだけの相対的変化を引き起こす。トンネル電流の試料パラメータ依存性に非線形性  $I_t(n)$  がある場合の、 $n(t)$  の時間分解STM信号への現れ方を考える。

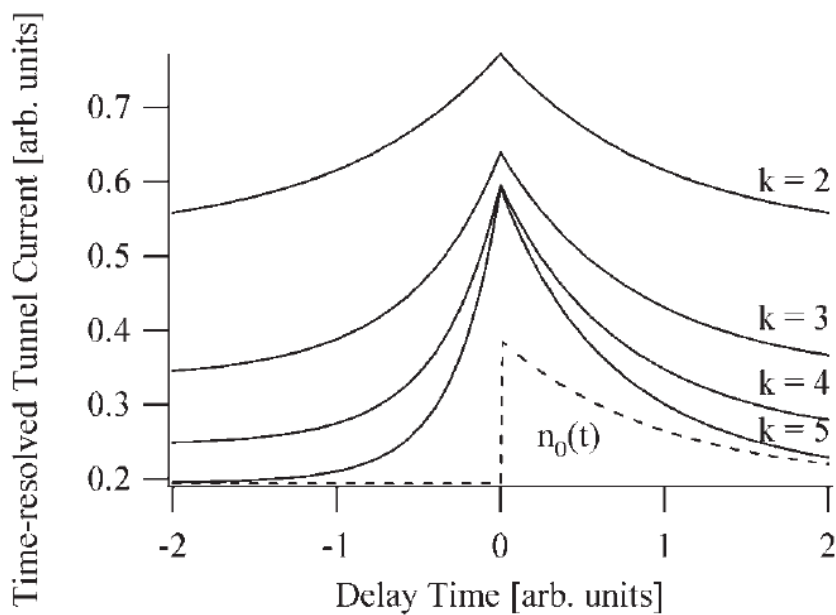


図 14 冪乗型の非線形性  $I_t(n) = n^k$  ( $k=2\sim 5$ ) に対して予想される時間分解STM信号形状。点線は試料パラメータ  $n$  に仮定した減衰過程

図14は冪乗型  $I(n)=n^k$  ( $k=2-5$ )の非線形性を仮定した場合に予想される信号である。点線で示したのが  $n(t)$  の変化であるが、時間分解STMに現れる信号には  $n(t)$  とは異なる時定数が見られ、その見かけの時定数は光パルス強度、2つのパルスの光強度比、非線形性パラメータ  $k$  などに依存して変化した。同様に、飽和的な非線形性  $I_t(n) = n^{1/k}$  ( $k=2-4$ ) に対して予想された時間分解STM信号形状を図15に示す。光照射によりトンネル電流が増加するという条件の下、ここでは飽和性を反映して遅延時間ゼロ付近でトンネル電流変化量が負になっている。冪乗型の場合と同様に、見かけの時定数は測定条件や試料の非線形性に応じて変化する、必ずしも  $n$  の減衰時定数とは一致しない。特に注目すべきは遅延時間が負側(ここでは2つの光パルス比を1:4としており、負の遅延時間は強いパルスが先に試料に入射する条件)に変曲点が現れていることである。この場合、信号を指数関数でフィッティングすることはできず、試料パラメータの減衰定数を知るためには、試料パラメータとトンネル電流との間の非線形性を完全に理解した上で、シミュレーション結果と実験結果とを付き合わせるという作業が必要となる。

唯一、試料の減衰時定数が比較的正確に求まる条件は、非線形性が非常に強い発散的な傾向を持つ場合 ( $I(n)=\exp(n)$ ) である。図16に示すように、このとき遅延時間が正の側(強度の弱いパルスが先に試料に入射する条件)において、時間分解STM信号は試料パラメータの減衰過程  $n(t)$  をほぼ正確に表すことになる。

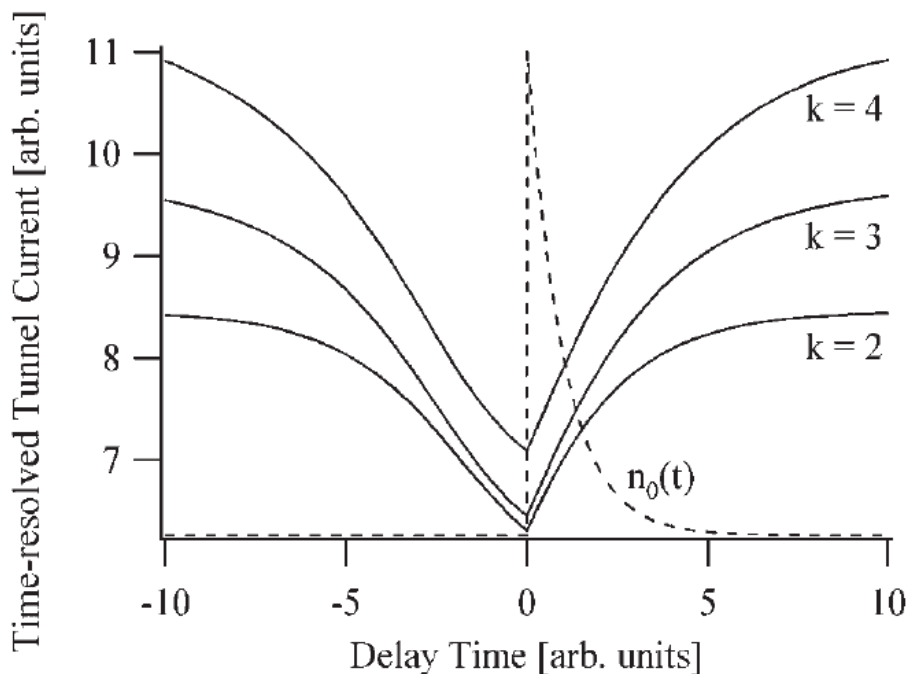


図15 飽和的な非線形性  $I_t(n) = n^{1/k}$  ( $k=2-4$ ) に対して予想される時間分解STM信号形状。点線は試料パラメータ  $n$  に仮定した減衰過程

一方、上記(a)の非線形性が強く、(b)の非線形性が無視できる場合、時間分解 STM 信号は、2 つ目の光パルスが入射する時点での、試料パラメータの値をほぼそのまま反映することになる。

以上、パルスペア励起時間分解 STM は非常に広い範囲の試料に適用可能である。実際には、(a)、(b)両者の効果が存在することが考えられるが、測定対象となる試料パラメータが光強度に対して強い非線形性を持つ場合には、時間分解 STM 信号からほぼそのまま試料の緩和過程を知ることができる可能性がある。光強度に対して強い非線形性を示さない試料パラメータの変化などもプローブ可能であるが、その場合には時間分解 STM 信号の解析には試料系に対する深い洞察が必要となる。すなわち、見た目の信号減衰過程がそのまま試料の緩和過程に対応するわけではないことを忘れてはならない。

本研究で明らかになったように、半導体試料を対象とした場合には、うまく測定条件を選ぶことで、光キャリアーの時間変化や、表面光起電力の時間変化、すなわち半導体表面に捕獲(トラップ)された電荷量の時間変化を正確に求めることができる。

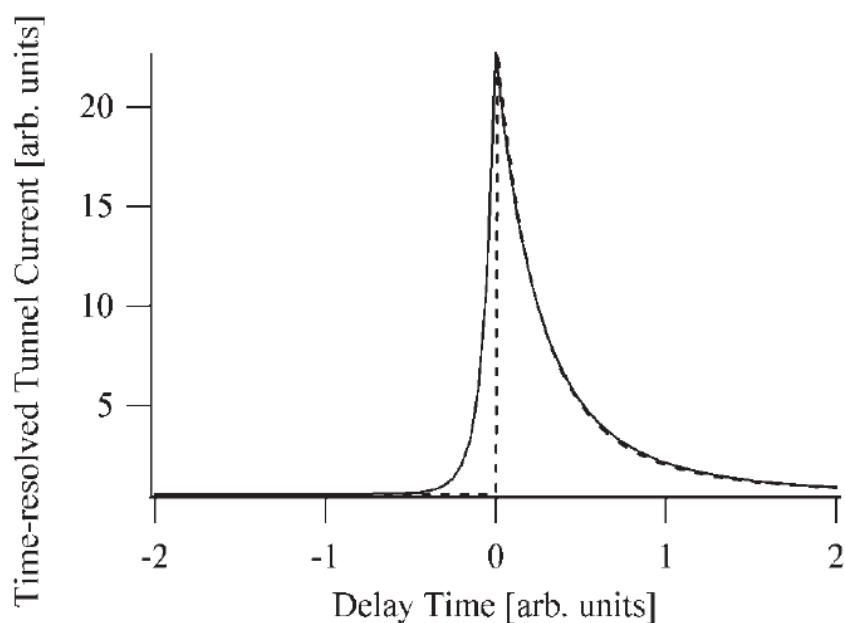


図 16 非常に強い発散的な非線形性を持つ場合

## 11. 半導体を試料とした SPPX-STM のメカニズム

SPPX-STM の測定では、遅延時間を変化させ対応するトンネル電流の変化を測定する。先に述べたように、2つのパルス光により誘起されるトンネル電流が OPR の場合の吸収飽和のように非線形の効果を持てば、同様の仕組みで高速の過程がトンネル電流の変化を通じて計測されることになる。ここでは、半導体を試料とした場合のメカニズムについて少し詳細に述べる。

図 17 は、光 STM を用いて半導体中のキャリアのダイナミクスを計測する際のモデル図である。(1)暗状態では、STM 探針(金属)–トンネルギャップ(絶縁体)–半導体試料による MIS 構造を形成している。探針・試料間に印加された電界が染み込むことにより表面ではバンドが湾曲しており(探針誘起バンドベンディング:TIBB)いる。湾曲の度合いは局所的なキャリアの密度に依存する。(2)光照射を行うと励起されたキャリアの再分布により TIBB は減少する。これが表面フォトボルテージ(SPV)で、光量が十分であればバンドはフラットになる。従って、SPV を計測すれば局所的なキャリアの分布に関する情報が得られるが、この計測を可能にするのが、周辺技術として開発を進めた「光変調トンネル分光法」である。光照射後、内部の励起キャリア密度は再結合、拡散などにより減少し、その後、表面近傍に捕獲されたキャリアが放出されてバンドは元の湾曲した状態に緩和していく。(4)この過程は速いものではピコ秒オーダーとなり、通常の STM で測定することはかなわない。そこで、(3)緩和の途中、光学的なポンププローブ光と同様に二つ目のパルス光を入射し、パルス間の遅延時間を変化させて対応するトンネル電流の変化を計測する。このとき、内部でのキャリアの再結合、拡散などのダイナミクスは、光学的な場合と同様、吸収飽和(最初のパルスで励起されたキャリアが残っていると、二つ目のパルスにより励起されるキャリア

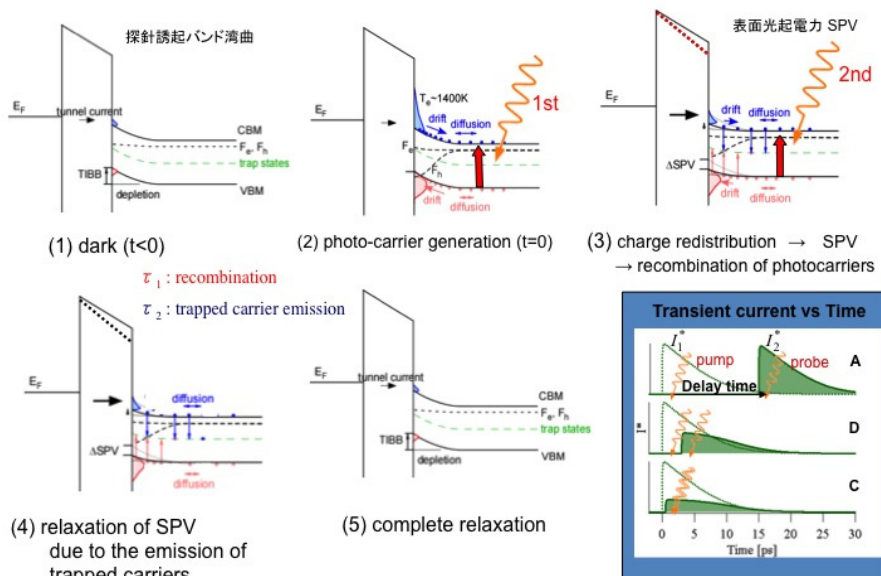


図 17 光 STM による半導体試料中キャリアダイナミクス測定機構の模式図

一の量が制限を受ける)により、二つのパルスにより励起されるトータルのキャリア密度に反映される。トータルのキャリア密度はTIBBの減少の大きさを定め、トンネル障壁の変化を通じてトンネル電流の変化を与える。従って、遅延時間を変化させて対応するトンネル電流の変化を見れば、内部でのダイナミックスの様子が観察されることになる。一方、表面に捕獲されたキャリアが放出される途中で二つ目のパルスが照射されると、バンド構造の緩和の時間が変化し、トータルのトンネル電流の大きさの変化を通して表面近傍でのキャリアのダイナミックスを観察することが可能になる。この場合、信号は、ロックイン計測で逆位相の成分としても計測される。

実験では、まず、 $WSe_2$ 、GaAs 試料を用い、(1)内部での励起キャリアの緩和過程と表面での捕獲キャリアの放出過程に対応する二つの信号が、それぞれ、ロックイン計測の同位相、逆位相成分として測定される、(2)探針・試料間の距離に対し、同位相の成分はトンネル電流の距離依存性を持つ、(3)光強度に対し、飽和吸収、表面フォトルテージの光量依存性を持つ、ことを示し、上記モデルが正しく局所情報を得られることを確認した。

引き続き、先に述べたように、GaAs/AlGaAs/LT-GaAs 超構造、GaAs-PIN 構造を試料として、(1)内部での励起キャリアの、再結合、拡散、ドリフトなどのダイナミックスを、時間分解STM信号の空間マッピングとして示すとともに、(2)GaAs 試料表面で、表面に存在するステップの準位により再結合速度が促進されることを示すことに成功した。

## 12. 局所キャリアダイナミックスの実空間マッピング

以上、新しく開発された顕微鏡(SPPX-STM)について述べてきたが、本項目では、SPPX-STM による超高速ダイナミックスの可視化について詳細をまとめる。まず、周辺技術である光変調トンネル分光法(Ligh-modulated STS: LM-STS)と、同手法による局所ポテンシャルの可視化について述べ、続いてSPPX-STM 信号の実空間マッピングについて述べる。

### 12-1. 光変調トンネル分光法による局所ポテンシャルの評価

半導体を試料とした SPPX-STM のメカニズム また、ナノスケールでのキャリアのダイナミックスは局所構造のポテンシャルに依存して変化するため、試料の局所ポテンシャルを正しく評価し時間分解信号とあわせて解析することが必要不可欠となる。周辺技術として光変調トンネル分光法を用い、GaAs 表面で単一欠陥レベルの構造による局所ポテンシャルを解析する技術の開発を進めたが、単一 Ga 空孔および原子ステップに捕獲されているキャリア一数を評価することにも成功した。

#### 12-1-1. 光変調トンネル分光法の原理

光変調トンネル分光法では、レーザー光照射により発生する表面光起電力 (Surface

Photovoltage = SPV) を計測するが、これによりナノスケールのドーパントプロファイルやキャリアのダイナミクスを、実空間で観察し解析することが可能になる。

図 18(a) に示した STM トンネル接合部の 1 次元バンド図を用い SPV の測定原理を説明する。STM の探針 (金属)、トンネルギャップ、試料 (半導体) は、金属-絶縁体-半導体構造 (MIS 構造) を構成し、暗状態では左図に示すように探針-試料の仕事関数の差や印加するトンネル電圧により探針直下で局所的なバンド湾曲 (Tip-Induced Band Bending = TIBB) が誘起されている。TIBB は試料の局所的なドーピングの度合いやキャリア密度、表面状態密度などを反映するため、正確な量を計測できれば、これら有益な情報を引き出すことが可能になる。以下に LM-STM を用い、SPV を計測して TIBB を求め、これら情報を得る方法を述べる。

実験では探針-試料間に試料のバンドギャップを上回るエネルギーを持つレーザー光を照射することによって SPV を発生させる。生成した光キャリア (電子-正孔対) は図 18(a) の右図に示すように電界ドリフトにより分離される。こうして生じた非平衡なキャリア分布はバンド湾曲を緩和する方向に電場を生むため、光照射により表面の電位が変化する。この変化が表面光起電力 (SPV) である。十分な強度の光源を用いれば明状態でバンドをほぼフラットにすることが可能で、このとき SPV は暗状態のバンド湾曲の量と等しくなる。

SPV の発生によりトンネルギャップに掛かる実効的なトンネル電圧が変化するため ( $\Delta V = \text{SPV}$ )、明状態と暗状態の 2 本の I-V 曲線を計測すると、2 本の曲線は SPV 分だけ電圧方向にシフトする。光変調トンネル分光法では、100Hz 程度でチョッピングしたレーザー光を探針

-試料間に照射しながら 1 秒程度時間を掛けて電圧を変化させ、この明・暗の両状態の I-V 曲線を同時に計測する (図 18(b) 挿入図)。

図 18(b) に真空中で劈開して準備した n-GaAs(110)表面で計測した I-V 曲線を、また図 18(c) に正バイアス部分の拡大図を示す。実線 (黒色) で示した I-V 曲線をみると、正バイアス側ではトンネル電流は光のオン・オフに同期して明状態 (赤点線)・暗状態 (青点線) の 2 つの状態間で周期的に振動していることが分かる。こうして得られる明状態と暗

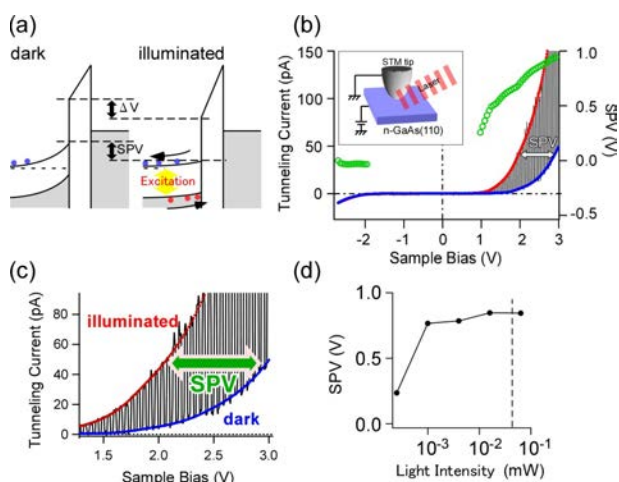


図 18 光照射のある場合、無い場合の、トンネル接合部の 1 次元 MIS 構造。(b) チョッピング光下で得られた I-V 曲線 (左軸) と SPV スペクトル (緑の○, 右軸)。挿入図は実験のセットアップを示す。(c) (b) の拡大図。(d) n-GaAs 上で得られた SPV の光量依存性  $V_s = +2.5\text{V}$ 。



状態の2つのI-V曲線の電圧方向のシフト量を暗状態のバイアス電圧に対してプロットすることでバイアス電圧に依存したSPVの情報を得る(図18(b)の緑色の丸印点)。

バンド構造とフェルミ準位の関係から、n型MIS構造の逆方向電圧に対応する試料正バイアス側ではTIBBが電圧に依存して大きくなるためSPVも大きくなる。一方、順方向電圧に対応する試料負バイアス側では、n-GaAsの伝導帯がフェルミ準位にピンングされるため、バンド湾曲がほぼゼロとなり、SPVもゼロになる。

光変調トンネル分光法では、従来の手法と同様に光をチョッピングしながら計測を行うため、光照射により発生する探針の熱膨張が問題となる。トンネル電流は探針・試料間の距離に指数関数的に依存するため、光のオン・オフを繰り返すことにより生じる探針の熱膨張が引き起こす探針-試料間距離の僅かな変化によりトンネル電流は大きく変化する。これにより、微弱な信号が隠されてしまったり、SPVが無くてもトンネル電流の振動が観測されてしまうので注意が必要である。我々の実験では、熱膨張の影響を抑えるため、レーザーのスポットサイズを $2\mu\text{m}$ 程度まで小さく絞り、探針へのレーザーの照射面積を小さくすることでこの問題を回避している。実際、図18(b)の負バイアス領域では、光チョッピングに同期したトンネル電流の変調成分が観測されておらず、熱膨張の影響は無視できるほど小さくなっていることが分かる。スポットサイズを小さくすることにより単位体積あたりの光強度は増加するので、全体の光強度が $0.1\text{mW}$ 以下と弱い条件でも、探針直下では十分な光強度で試料の励起を行うことが可能である。レーザー光強度を $0.1\text{mW}$ 以上にすると、スポットサイズに注意しても熱膨張の影響は避けられなくなる。図18(d)は同試料を用いて $V_s = +2.5\text{V}$ で計測したSPVのレーザー光強度依存性を示すが、SPVの測定は点線で示した飽和領域(明状態でバンドがフラット)で行っており、観測されたSPVは暗状態でのバンド湾曲量に対応する。

#### 12-1-2. p-n接合を流れるキャリアーの可視化

MBE成長したGaAs p-n接合の(110)劈開面に対し光変調トンネル分光法を用いて測定を行った結果を例として紹介する。p-n接合試料はn+-GaAs(001) (Si-ドーパ $8.3 \times 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ )上にMBEを用いて作製した(p層: Be-ドーパ $2.0 \times 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ , n層: Si-ドーパ $2.0 \times 10^{18}\text{ cm}^{-3}$ )。図19(a)に実験の模式図を示す。空間分布の測定では、通常のSTS測定の場合と同様に探針を走査しSTM像を取得しながら等間隔でI-V曲線を計測し、それぞれのI-V曲線に対してSPVとその電圧依存性を解析する。

図19(b)はp-n接合に電圧を印加していない閉回路状態( $V_f=0$ )で計測したp-n接合界面上のSPV像である。左図は試料バイアス $V_s = -2.5\text{V}$ 、右図は試料バイアス $V_s = +2.5\text{V}$ でプロットしたSPVマッピング像である。上述のように試料負バイアスにおいて、n型領域(左側)

は順方向バイアスの状態になるためSPVはほとんどゼロであるが、逆方向電圧に対応する試料負バイアスでは、p型（右側）でSPVが大きくなっている。これとは逆に、試料正バイアスではn型が逆方向電圧、p型が順方向電圧の状態となるために、SPVはn型で大きく、p型でほとんどゼロになる。このようにSPVが示す明瞭な電圧依存性とドーピング依存性から、試料のドーパントプロファイルを高い空間分解能で行うことが可能である。個々のドーパントに対応したSPVを計測することも可能になっている。

光キャリアによりバンドの湾曲が緩和することからも分かるように、SPVの大きさはその場所でのキャリア密度に関係する。従って、例えば、p-n接合に順方向電圧を印可した状態で図18(b)と同様の実験を行い結果を解析すると、印可したバイアスによる少数キャリアの流れを可視化することが可能になる。

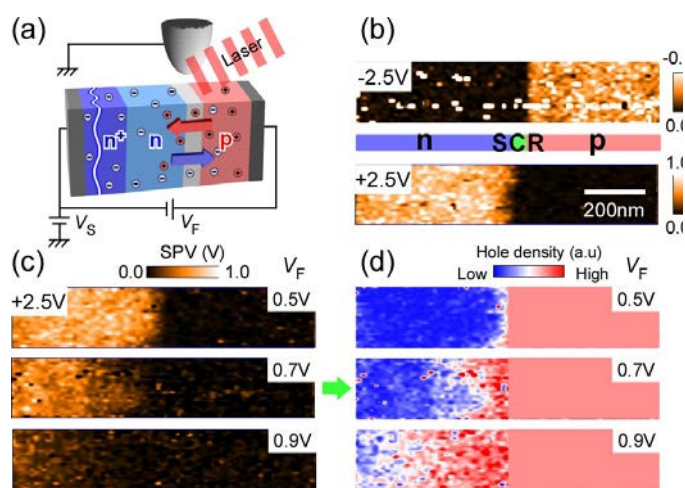


図19(a) GaAs p-n接合を試料とした光変調トンネル分光法測定の様式図。(b) SPVマッピング( $V_F = 0$ ),  $V_S = -2.5V$  (上図)と $V_S = +2.5V$  (下図), (100nm x 200nm, 80 x 20 LM-STs スペクトル)。SCR: space charge領域。(c) SPVイメージ p-nの順方向バイアス依存性。(d) (c)から計算した少数キャリア流の様子。

図19(c), (d)に結果の一例を示す。p-n接合に順方向電圧を印可すると図19(c)に観られるようにSPVの分布が変化する(n型領域でオレンジ色から黒色への変化)。これは少数キャリアである正孔注入により探針-試料間の電界が遮蔽され、TIBB、即ちSPVが減少することによる。電界が遮蔽される大きさは正孔の密度に依存するが、正孔は再結合などにより消滅するため、その密度は界面から遠ざかるにつれて指数関数的に減衰する。図に観られるSPVの変化は、この

注入正孔密度の変化を反映しており、SPVの値と少数キャリア密度の関係式を用いることで、図19(c)のSPV像から注入キャリアの空間分布(図19(d))を計算することが出来ることになる。

以上の結果は、マクロに定義されてきた再結合領域や拡散領域の様子を微視的に示す初めてのもので、拡散長についての定量的な解析や、原子欠陥、単一ドーパントの影響を実空間で計測し解析することが可能である。空間的な揺らぎは、原子レベルのドーパント分布に伴う局所的なポテンシャル揺らぎや界面の構造揺らぎなどにより引き起こされるが、最初に述べたように、ナノスケールでの精密な計測・解析の重要性を示している。

本結果は、Phys. Rev. Lett.に掲載されたが、同時にFocusに選ばれて掲載されている。

### 12-1-3. 原子欠陥による局所ポテンシャル変調の評価

こうした揺らぎを解析するには、原子欠陥や単一ドープメントによる局所ポテンシャルの変調を評価することが必用になるが、先に述べたように、本手法は表面でのバンドの湾曲の状態をナノスケールで計測するものであり、同様の手法で、求める結果を得ることができる。図 20 は、GaAs 表面の単一原子欠陥と原子ステップによるギャップ内準位の影響で変調されたポテンシャルの様子を示している。図 19 で可視化されたキャリア密度の揺らぎは、界面構造の乱れやこれら原子欠陥等の影響を表したものである。ただし、得られた結果は定常的な流れを可視化したものであり、新しく開発された時間分解・顕微鏡は、こうした局所ポテンシャルの中のそれぞれの場所におけるキャリアのダイナミクスを追うことを可能にしたものである。

「新しい遅延時間変調法」は、鏡を用いた遅延時間変調を、パルスピックアップ法によりデジタル的に行い、幅広い寿命に対応した測定とともに、高 S/N 比を実現することで、異なる寿命を持つ異なる材料からなるナノ構造を対象として時間分解信号を短時間に計測し実空間でマッピング（可視化）することを可能にした。

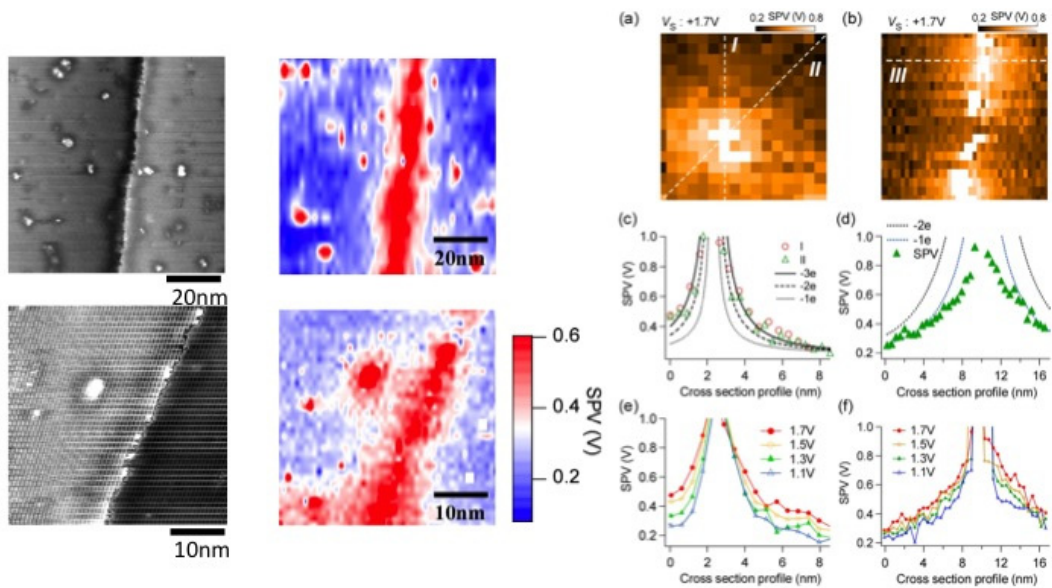


図 20 単一原子、ステップ近傍でのポテンシャル分布（左）と、ギャップ内準位における帯電電荷計算値との比較（右）。同時に開発を進めた『光変調トンネル分光法』により解析が可能になった。

## 12-2. SPPX-STM 信号の実空間マッピング

以下に、時間分解信号の実空間・ナノスケールマッピングの結果や基本技術などをまとめる。

### 12-2-1. 時間分解信号計測法

走査トンネル分光法(STS)には二つの計測方法がある。一つは、試料表面の各点で電流・電圧特性( $I$ - $V$  曲線)を計測する方法で、 $I$ - $V$  曲線を微分することで、それぞれの場所における局所状態密度が求まるが、多くの点でデータを求めるには非常に長い時間を必用とする。測定点を選択すれば時間は短縮されるが、空間的な情報は減少する。他の一つは、例えば、ロックイン計測(バイアスを小さな値で周期的に変調し、対応する信号を取り出す計測法)により、各バイアス電圧に対応した状態密度を求める方法である。得られた像は  $dI/dV$  像とも呼ばれ、定在波の解析などでよく使われている。異なる電圧で測定を行い組み合わせることで先の方法と同様に全体の情報を得るが、必用とする電圧を選択する(状態密度を得る電圧を犠牲にする)ことで、測定時間を短縮することが可能である。

時間分解信号も、同様に二つの方法で取り込むことができる。一つは、STS で各点においてスペクトルを求めたように、試料表面の各点で遅延時間を変化させて図 5, 図 12, 図 13 などのスペクトルを計測し、二次元的な時間分解の情報を得る方法である。もう一つは、ロックイン計測による方法で、選択した遅延時間におけるキャリアー密度の空間分布を求め、異なる遅延時間に対して計測を行い得られたデータをフィッティングすることより時間分解信号を得るものである。STS の場合と同じく、計測する遅延時間を選択することで測定時間が短縮される。

### 12-2-2. 時間分解信号の結果

次に、いくつかの結果を例として示す。

#### (1) GaAs/AlGaAs/LT-GaAs 超構造の結果

まず、図 12 で示した GaAs/AlGaAs/LT-GaAs 超構造を対象とした結果をまとめる。

図 12 に示した GaAs, AlGaAs, LT-GaAs (低温成長 GaAs) からなる超構造の AlGaAs-LT-GaAs 領域の横切る、ある直線に沿って遅延時間固定法により時間分解信号を測定したところ、サブピコ秒領域で減衰していく様子が得られた。1次元ではあるが、STM と超短パルスレーザーを融合した新しい顕微鏡により、時間分解信号の空間マッピングを行った初めての例である。

こうした手法を二次元的に適用し計測を行えば、時間分解信号の実空間・二次元マッピングが実現されることになる。図 21 に例を示す。

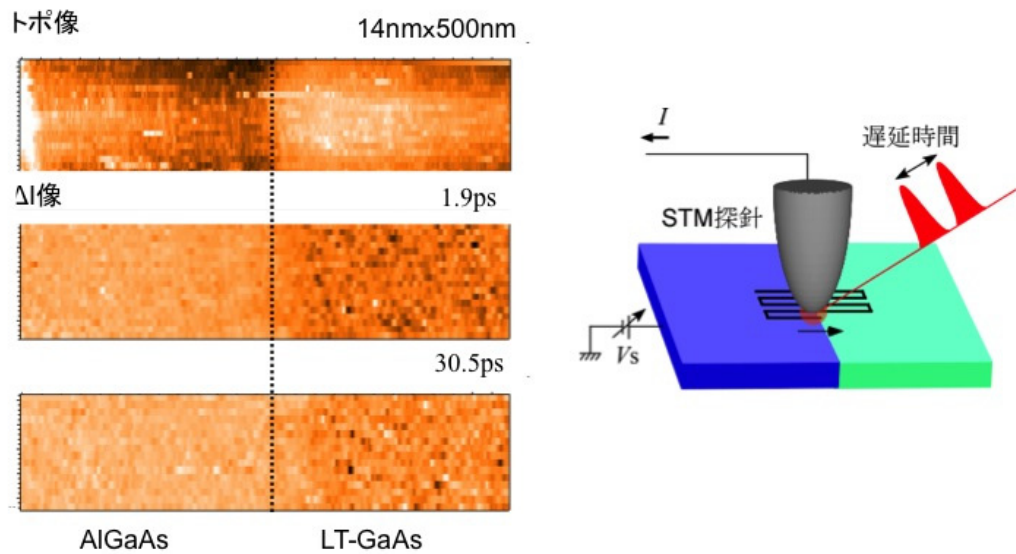


図 21 GaAs, AlGaA, LT-GaAs 超構造の SPPX-STM データ2次元マッピング例

## (2) GaAsPIN 構造 SPPX-STM 信号の実空間マッピング

GaAs-PIN 構造を試料として時間分解信号を測定し、結果を2次元的に表示したところ、絶縁領域(i-領域)で、電界により見かけの寿命が短く計測されている様子が分かった。デバイスサイズの微細化により、ナノスケールでの空間的な揺らぎは特性に直接影響を与えることから、太陽電池の開発などでも、現在、非常に重要な問題となっている。こうした現象は界面の構造などにも敏感で、シミュレーションで正しい解析を遂行するには、本研究で初めて得ることが可能になった、計算と直接比較可能な実験データがどうしても必要とされ、今後、重要な役割を担うことが期待される。

### (3) GaAs ステップ構造の SPPX-STM 実空間マッピング

GaAs 表面の単原子ステップを含む領域での SPPX-STM 像を測定した。内部での再結合はほぼ均一であるが、表面では構造揺らぎが原子サイズでも、ポテンシャルはより広範囲に及び、キャリア緩和の空間分布がそれほど急峻にならずに数 nm 程度になるケースが往々にしてある (図 20)。半導体デバイス開発では、そのようなナノスケールの空間揺らぎがマクロなデバイス特性を決定するため、今日では、こうした構造と電子特性の関係を理解し制御することが最も重要な課題の一つである。従って、こうした状況をナノスケールで実空間の像として提供可能であることこそ、我々が開発した手法が、ナノテクノロジー領域で求められる手法として非常に重要で価値ある所以である。

#### (4) Co/GaAs 構造の SPPX-STM 実空間マッピング

GaAs 表面に吸着させた Co 粒子を SPPX-STM 測定した。界面には、ステップの場合と同様にギャップ内準位が形成され、キャリアの再結合が促進される。STM 像, 時間分解像を重ねて見たところ, 両者の対応は非常によく, 界面で再結合が促進されている様子を良く表していることがわかった。

#### (5) 多接合型太陽電池 GaInNAs の評価

GaInNAs は太陽電池として有望な構造の一つであるが, N や欠陥の不均一な分布によると思われる原因により目的とする性能を実現できないことが問題となっている。GaInNAs 試料の STM 像 (トポ像) と時間分解計測の結果を比較したところ, トポ像ではステップなどの構造が見られるが, こうした構造とは関係なく寿命の揺らぐ様子が見られた。

### 13. 更なる改良:光励起強度の改善

新しく導入した「パルスピックアップ法」は、矩形波的に遅延時間を変化させる仕組みで、早い応答速度で大きな遅延時間変調を行うことにより、信号の絶対値を与える計測を可能にしたり、一つのシステムで幅広い寿命領域をカバーするなど、非常に有用な手法である。しかし、レーザー光のパルス列を間引くことによる光強度の低下が否めない。これは、微弱な信号を対象とする測定では改善の余地があり、より一般的な測定法として確立するためには重要な課題である。現在、こうした問題を解決する新しい手法の開発を進めている。

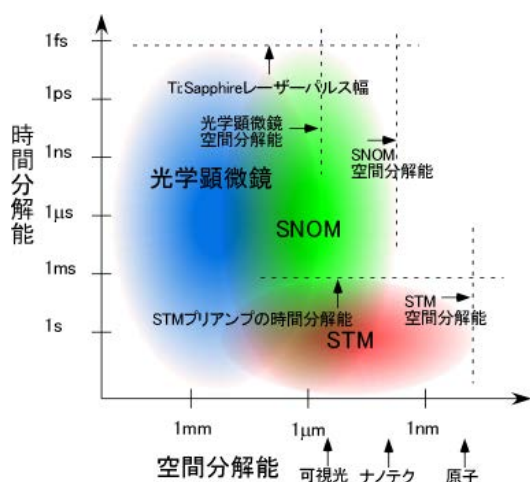
通常、Ti:Sapphire レーザー発振器から出力されるパルスはおよそ 10 ns 程度の繰り返して出力される。しかし今回我々が考案した、パルスピックアップを用いた遅延時間変調方式は、実効的なパルス周期を 1  $\mu$ s よりも短くできないという制約を持つ。これは、パルスピッカー素子の動作周波数の制限によるもので、現時点でこれを向上させる技術は存在しない。従って、レーザー発振器から出力されるレーザーパルスすべて測定に使った場合に比べて 1 秒あたりの試料の励起回数が約 100 分の 1 しかなく、特に短い寿命を持つ現象の測定において強い信号強度が得られないという弱点を持っていた。そこで、パルスを間引くことなく高速変調を行うことで試料の励起回数を高め、信号強度を約 100 倍に高める方法を新たに考案した。この改良により、1ps を切るような短い寿命を持つ超高速現象に対する同手法の信号雑音比が 100 倍からそれ以上まで向上することが予想され、現在は、半導体中のキャリアダイナミクス測定が主になっている同手法の適用範囲を大きく広げる。



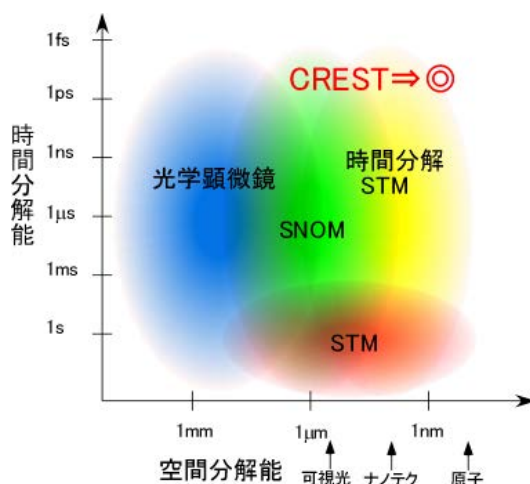
(2)研究成果の今後期待される効果

今や半導体素子はサイズが数十 nm で制限される領域に達し、特性を制御するために導入されたドーパントの空間分布や界面の揺らぎが、得られる機能に直接影響を及ぼす段階に至っている。電荷に加えスピンを利用した新しい特性を持つ機能材料・素子の開発も盛んであるが、局所的な秩序や構造の揺らぎはスピンの生成・消滅、相互作用(量子相関)などにも大きな影響を与え機能を左右する。同様に、超伝導の  $T_c$  や各種相転移のマクロな特性も、平均的な情報を得る手法では隠されてしまう局所ダイナミクスによって左右されることが明らかになってきた。求める機能を実現するためには、マクロな現象の裏に隠れた物理を明らかにし正しく理解することが必要であるが、これまで、こうした要求に応えることは困難であった。

本研究で開発されたシステムは、原理的には超短パルス光のパルス幅に対応する時間分解能



と、STM の空間分解能を併せ持つ新しい顕微鏡である。本研究で用いたパルス幅(140fs)とサブ nm の空間分解能の実現を確認し(図 22), ナノスケールでのキャリアダイナミクスを実空間で可視化(イメージング)することが可能であることを示した。しかし、本顕微鏡の対象はこれだけにとどまらず、例えば、モノサイクル化された光や整形された光など、現在進められている様々な先端光科学技術を組み込み発展させることが可能である。更



に、偏光を用いればスピンを対象とした解析が可能になるし、10fs 程度のレーザーを導入すれば、励起状態やフォノンの解析が(図 23), また、THz 光源を用いれば、超伝導体の研究や分子振動の選択励起などに非常に有用な手法となる。ナノデバイス開発は、個々の要素としては進展著しいが、現在、これら要素をシステムとして構築する技術の開発が望まれ大きな課題となっている。我々のシステムは、動作下で各要素の局所ダイナミクスを原子構造と対応させて調べることが可能

図 22 本手法の位置づけ：超短パルス光幅の時間分解能と STM の空間分解能を併せ持つ新しい顕微鏡法(時間分解 STM)を実現(本実験で用いたパルス幅 140fs, サブ nm の分解能を確認)。

であり、本プロジェクトの成果は、ナノスケール科学の新たな展開とともに更に重要な役割を担い、将来の科学技術の進展に大きく寄与するものとする。また、本手法の普及により、光科学技術の新たな展開も期待される。

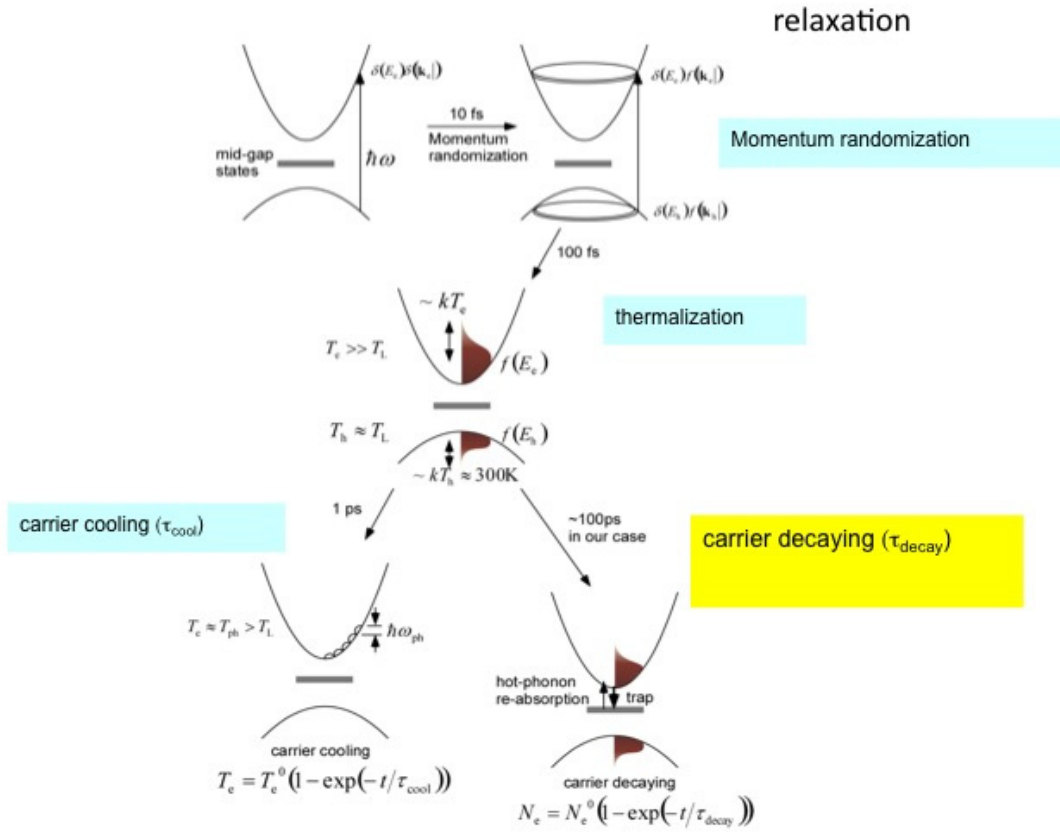


図 23 SPPX-STM はナノスケールのポンププローブ法 (+  $\alpha$ )

## 4.2 マルチ計測光励起プローブシステムの開発((株) ユニソクグループ)

### (1)研究実施内容及び成果

#### 1. 研究のねらい

時間分解 STM 装置を現実のデバイス構造評価に適用する際には、STM 探針を試料の目的箇所効率よく配置し、適当なバイアス電圧やバイアス電流を加えた条件下で、複数箇所を同時に測定することが望まれる。これを実現するため、独立駆動可能な4本の走査プローブと、それらプローブを試料上の目的箇所に配置するための走査電子顕微鏡(SEM)とを組み合わせたマルチ計測光励起プローブシステムを開発した。本装置の4本の走査プローブは、試料の任意位置にバイアス電圧やバイアス電流を加えるために使用可能であるほか、それぞれがSTMプローブとして動作する。研究開始時点においては、STM動作が可能なマルチプローブ装置は世界的に見ても実現されていなかったことから、いかにSTM装置としての基本動作を高めるかが第一の課題となった。

#### 2. 研究実施方法

マルチプローブ装置では、試料表面に対して探針が直立せず対称性の悪い配置を取らざるを得ないため、多くの外部振動モードが探針・試料間距離にカップリングし測定に悪影響を及ぼしてしまう。また、4つの走査機構を載せるため観察ステージの重量が増し、除振機構の性能を高めることが難しい。これらの問題点を両グループ合同の議論により精査し、走査機構の軽量化や剛性の強化によりSTM装置としての基本性能を高めると共に、重川グループ側で時間分解STMとして用いるための要求事項をまとめ、設計・開発に望んだ。まず長村グループで試作したプローブ機構を重川グループで性能評価し、結果を長村グループに戻して改良する、という作業を2度にわたり行い、STM動作可能な走査機構を実現した。装置全体の設計には、時間分解STMを行うために必要な光路を確保し、さらにその調整に必要な目視による広い視野、除振機構の構成方法などについて重川グループから要求を出しつつ、詳細設計は長村グループが行った。組み立て、および、個々の探針の大気中におけるSTM動作の確認までを(株)ユニソクの研究室で行い、その後、筑波大学へ搬入し、超高真空での動作確認およびSEMとの連携動作を確認した。複数の探針を連携動作させ、複数探針を用いた高度な測定を行うための制御システムの開発は筑波大学で行われた。

製作した顕微鏡装置の全体像を図24(a)、(b)に示す。本装置は超高真空、極低温下で動作する4探針プローブ顕微鏡と、プローブを試料上の目的位置に運ぶための超高真空SEM、そして、超高真空を保ったまま試料および4本の探針を交換可能な搬送システムから構成される。プローブ・探針スキャナ部分や探針・試料交換機構、除振機構、冷却機構、SEM可動機構に新規の設計を取り入れ、マルチプローブシステムとしての性能向上を図

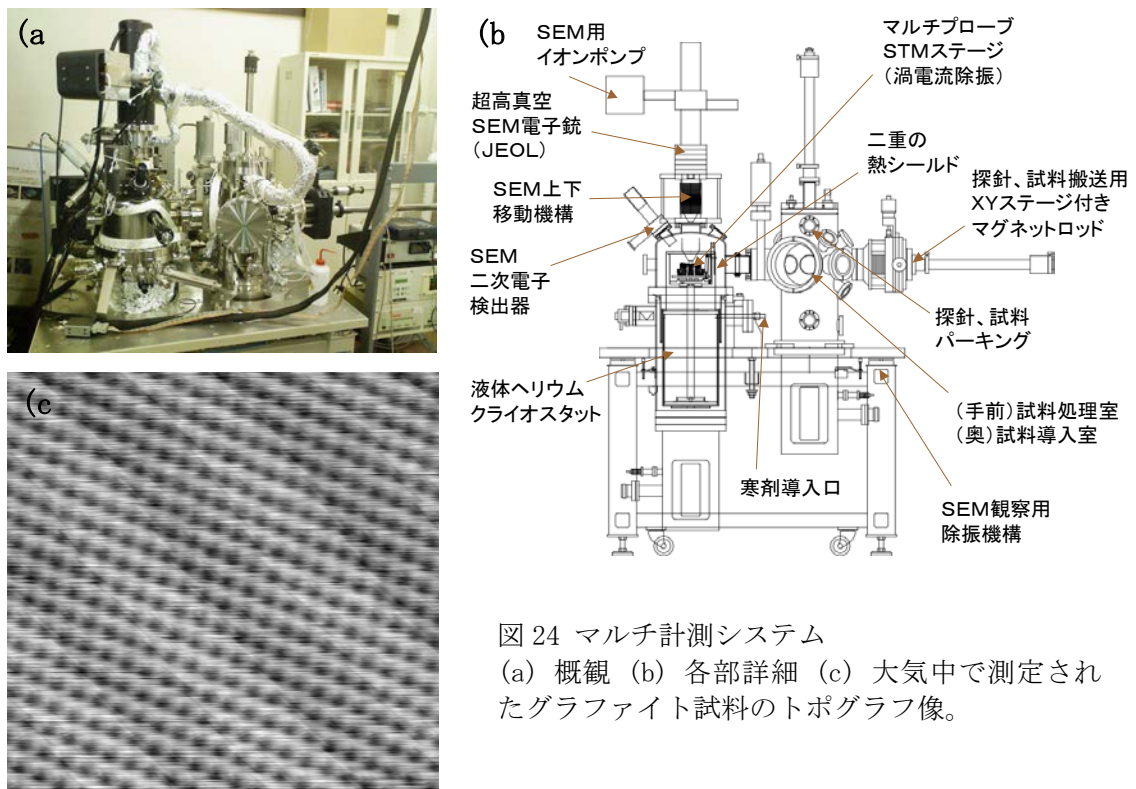


図 24 マルチ計測システム  
 (a) 概観 (b) 各部詳細 (c) 大気中で測定されたグラファイト試料のトポグラフ像。

った。

装置組み立て後、ユニソクサイドで試料・探針交換機構、液体ヘリウムクライオスタット、除振機構、STMシステムが正常に動作することを確認した。図 24(c)に示すのは本装置で測定したHOPG試料のトポグラフ像である。ここで観測された雑音レベルはマルチプローブシステムとしては世界最高レベルの信号雑音比を有しており、通常の1探針STMシステムと比較しても遜色ないものと言える。開発したマルチプローブ装置が原子分解能を持つSTMとして十分な機能、操作性、性能を持つことが確認された。

筑波大学への搬入後、装置に超高真空SEMを組み合わせ、超高真空環境において多探針システムとしての動作確認を行った。本装置独自の工夫としてSEMの上下機構および、開閉式の熱シールドの設計がある。これにより、SEM観察時以外にはSEM位置を試料から遠ざけることで時間分解測定時の光路の確保やその調整のための広い視野を確保可能で、また熱シールドを閉めることで極低温測定が実現できる。さらに、SEMとの物理的干渉がないため除振機構の動作距離を十分に取ることが可能であり、真空内での除振性能が大幅に向上している。この新規設計した上下機構がSEM光学系の持つ高い分解能を発揮するのに十分な強度を持ち、試料上の任意の位置に高い精度でプローブを誘導できることを確認するため図 25 の実験を行った。 $\phi 0.25$  のタングステン線を電解研磨して作成したSTM探針をSEM観測下で移動し、試料上の特定箇所では探針先端を互いに $1\mu\text{m}$ 以下の距

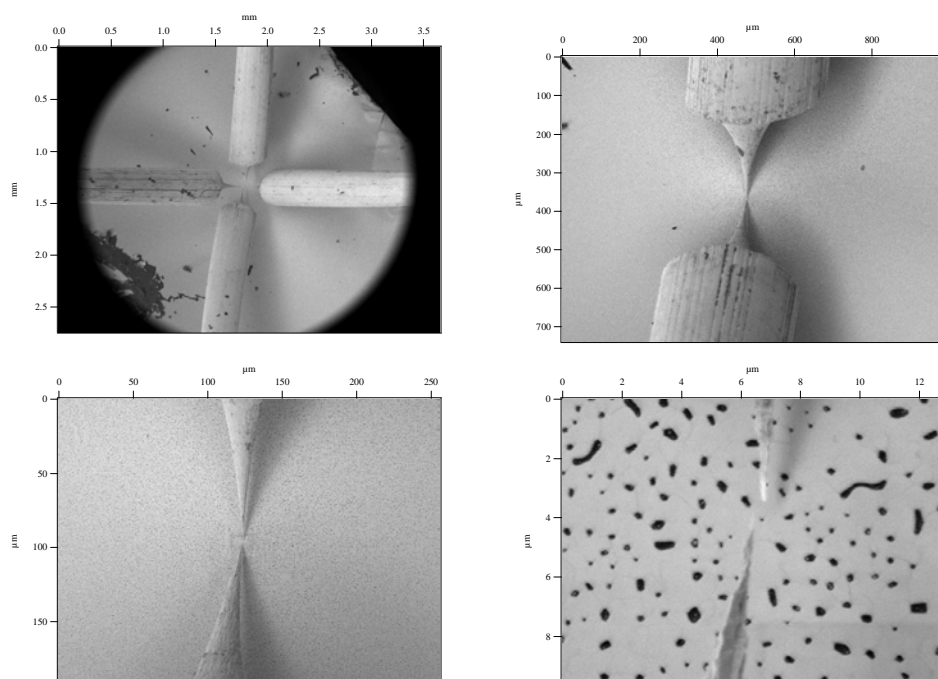


図 25 SEM 観測下での STM 探針位置調整  
異なる探針を試料上の任意位置において  $1\ \mu\text{m}$  以下の距離まで容易に接近させることが可能

離まで接近させられることが確認できた。本装置のプロブ顕微鏡としての視野は  $2.5\ \mu\text{m}$  あるため、これらの探針はすでに互いの走査領域に入っており、本装置が多探針システムとして微細試料の任意位置を測定可能であることが確認された。

多探針測定システムでは、測定装置自身の性能と共に、複数探針を連携させて動作させるための制御システムの構築が重要な開発課題となる。このためのシステムは筑波大学において開発が進められた。このシステムは4つの探針を1つのPCから制御可能とし、制御にはデジタル信号処理を用いた。任意軸へのフィードバック動作、変調信号印加、電流・電圧印加動作を、複数探針について同時に切り換え、ロックイン測定を含め多様な測定を行うことが可能である。また、多探針 STM では各プロブに異なるバイアス電圧を印加することで、試料上の任意位置にバイアス電圧やバイアス電流を設定できること、また、プロブからプロブへと流れる電流を検出できることが望まれる。しかし一般にプロブにバイアス電圧を印加すると、電流検出プリアンプからプロブまでの同軸ケーブルが持つ寄生容量( $\sim 100\ \text{pF}$ )により変位電流が生じてしまい、電流検出に悪影響を及ぼす。このため、新システムではこの寄生容量を相殺する電流検出回路を導入し、実効的な容量成分を約  $1/3,000$  に軽減し、プロブへの電圧印加と精密な電流測定を両立させた。

このシステムを用い、複数探針による走査トンネルスペクトル測定を行った結果を図 25 に示す。我々の研究と平行して、同様の多探針 STM システムを開発したグループは他にも存在するが、それらを用いたこれまでの研究はすべて、STM 動作はナノスケールでの試料構造を把握するためだけに用いられ、実際の電気伝導測定時にはプローブを試料に接触させ導電性プローブとして用いていた。図 26 の結果は、複数探針による同時走査トンネルスペクトル測定結果であり、他の研究とは一線を画する。測定では、(a)~(c)に示したように、試料・探針間に電流を流す場合(a)および(b)と、探針・探針間に電流を流す場合(c)とで、2つの探針と試料(ここでは Si(111)-7x7 表面)との間のトンネル接合の  $I-V$  特性を、寄生容量による変位電流について細心の注意を払いつつ精密に測定した。(d)が探針 1 の、(e)が探針 2 の  $I-V$  特性である。赤と青はそれぞれ探針・試料間に電流を流した場合、つまり(a)および(b)の配置で計測された特性、および、探針・探針間に電流を流した場合、つまり(c)の配置で計測された特性である。探針 1 と探針 2 とで  $I-V$  特性が異なるのは、探針先端の化学的構造に違いがあったためと考えられ珍しいことではないが、赤と青のプロットが試料 1 でのみ、誤差の範囲を超えて優位に差違を生じていることは注目に値する。これは、試料から探針に流れるキャリアと、探針から探針に流れるキャリアとで、そのトンネル特性が異なる事を示しており、流れてきた経路の履歴が探針直下のキャリア特性にどのように影響を及ぼしているかについて、今後の解明が待たれる非常に興味深い結果である。

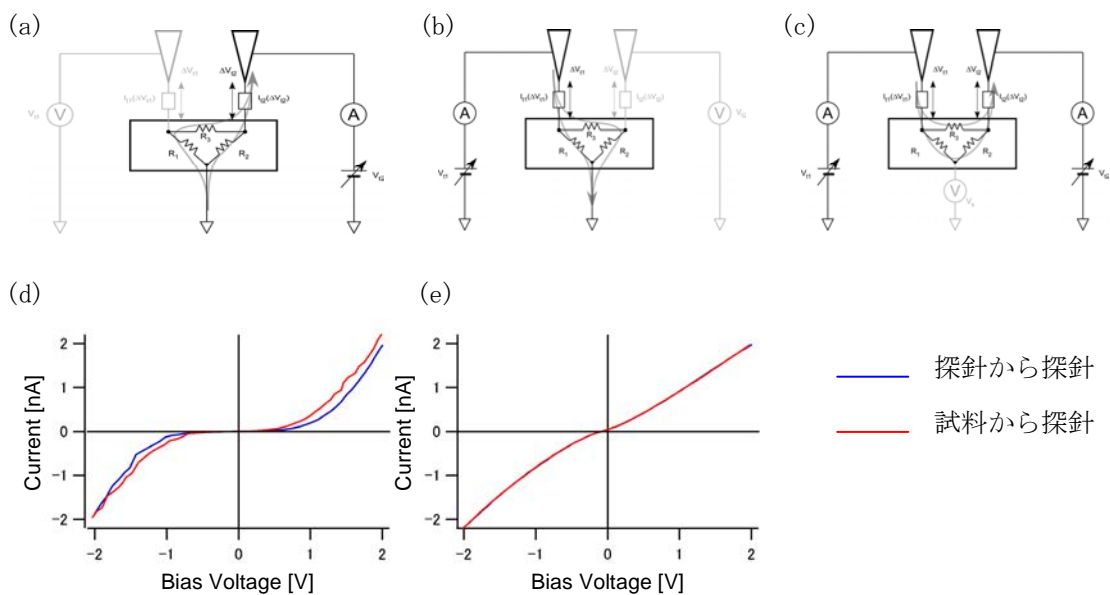


図 26 多探針走査トンネルスペクトル測定結果

## (2)研究成果の今後期待される効果

本プロジェクトでは、初期段階で単探針STMを用いた時間分解STM測定に飛躍的進歩を得たため、後半は単探針STMを用いた測定およびその物理的解釈に注力し、多探針STMによる時間分解測定は積極的に行わなかった。今後は継続的に、ここで開発したマルチ計測光励起プローブシステムとの連携により時間分解STMの今後の応用範囲拡大を目指す。これまでに、STMとしての基本性能の確認、複数探針の連携動作による高度な測定フレームワークが完成しているため、今後の計画としては、(1)SEMの分解能や多点同時測定を生かした光励起測定への応用、(2)制御システムから生じる雑音のさらなる低減、(3)複数プローブを連携した新たな時間分解測定手法の開発、などが挙げられる。

## § 5 成果発表等

### (1)原著論文発表 (国内(和文)誌 0 件、国際 (欧文) 誌 25 件)

1. O. Takeuchi, M. Aoyama and H. Shigekawa:  
"Analysis of time-resolved tunnel current signal in sub-picosecond range observed by shaken-pulse-pair-excited scanning tunneling microscopy"  
Jpn. J. Appl. Phys., 44, 7B(2005) 5354-5357.
2. O. Takeuchi, M. Aoyama, H. Kondo, Y. Terada and H. Shigekawa:  
"Nonlinear dependences in pulse-pair-excited scanning tunneling microscopy."  
Jpn. J. Appl. Phys., 45, 3B(2006) 1926-1930.
3. S. Yoshida, J. Kikuchi, Y. Kanitani, O. Takeuchi, H. Oigawa and H. Shigekawa:  
"Tip-induced band bending and its effect on local barrier height measurement studied by light modulated scanning tunneling microscopy."  
e-journal, surface science and nanotechnology 4, (2006) 192-196.
4. H. Shigekawa, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada, H. Kondo, and H. Oigawa:  
"How to realize ultimate spatial and temporal resolutions by laser combined scanning tunneling microscopy?"  
MRS Fall meeting, Symposium R, Proceedings, Invited, MRS Online Library & Print. (2006)
5. S. Yasuda, S. Yoshida, J. Sasaki, Y. Okutsu, T. Nakamura, A. Taninaka, O. Takeuchi, and H. Shigekawa:  
"Bond fluctuation of S/Se anchoring observed in single-molecule conductance measurements using point contact method with scanning tunneling microscopy."  
J. Am. Chem. Soc., 128, 24 (2006) 7746-7747.
6. R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada:  
"Strain compensation effect on stacked InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs layers."  
MRS symposium Proceedings, 0891, (2006) EE03-01.
7. R. Oshima, H. Komiyama, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada:  
"Fabrication of multi-layer self-assembled InAs quantum dots for high-efficiency solar cells."  
Proceedings of 4th 2006 IEEE 4th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion. (2006) 158.
8. R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa and Y. Okada  
"Long wavelength InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs strain-compensating layers."  
Physica E, 32, 1-2, (2006) 77-78.
9. R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa and Y. Okada:  
"Multiple stacking of self-assembled InAs quantum dots embedded by GaNAs strain compensating layers."  
J. Appl. Phys., 100, (2006) 083110.



10. Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, A. Taninaka, O. Takeuchi, and H. Shigekawa:  
 "Ultrafast photoinduced carrier dynamics in GaNAs probed using femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy."  
 Nanotechnology 18, (2007) 044028.
11. S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, O. Takeuchi, Y. Okada and H. Shigekawa:  
 "Microscopic basis for the mechanism of carrier dynamics in an operating p-n junction examined by using light-modulated scanning tunneling microscopy."  
 Phys. Rev. Lett. 98, (2007) 026802.
12. K. Kanazawa, Y. Konishi, Y. Saino, S. Yoshida, O. Takeuchi, and H. Shigekawa:  
 "Anisotropic free-electron-like dispersions and standing waves realized in self-assembled monolayers of glycine on Cu(100)"  
 J. Am. Chem. Soc. 129, 4, (2007) 740-741.
13. H. Shigekawa, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada, H. Kondo, and H. Oigawa:  
 "Nanoscale dynamics probed by laser-combined scanning tunneling microscopy."  
 Thin solid films, 516, 9 (2008) 2348-2357.
14. O. Takeuchi, Y. Ohrai, S. Yoshida, and H. Shigekawa:  
 "Kelvin Probe Force Microscopy without Bias-Voltage Feedback."  
 Jpn. J. Appl. Phys., 46, 8B(2007) 5626-5630.
15. M. Berthe, S. Yoshida, Y. Ebine, K. Kanazawa, A. Okada, A. Taninaka, O. Takeuchi, N. Fukui, H. Shinohara, S. Suzuki, K. Sumitomo, Y. Kobayashi, B. Grandidier, D. Stievenard and H. Shigekawa:  
 "Reversible defect engineering of a single-walled carbon nanotubes with scanning tunneling microscopy."  
 Nano Lett. 7, 12 (2007) 3623-3627
16. H. Shigekawa, S. Yoshida, O. Takeuchi, M. Aoyama, Y. Terada, H. Kondo and H. Oigawa:  
 "Nanoscale Dynamics Probed by Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy."  
 Thin Solid Films, 516, 9 (2008) 2348-2357
17. S. Yoshida, Y. Kanitani, O. Takeuchi and H. Shigekawa:  
 "Probing nanoscale potential modulation by defect-induced gap states on GaAs(110) using Light-Modulated Scanning Tunneling Spectroscopy."  
 Appl. Phys. Lett., 92, (2008) 102105
18. S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi and H. Shigekawa:  
 "Nanoscale mapping of built-in potential in GaAs p-n junction using Light-Modulated STM."  
 Jpn. J. Appl. Phys., 47, 7 (2008) 6117-6120
19. A. Takata, R. Oshima, H. Shigekawa and Y. Okada:  
 "Growth of GaNAs films with As<sub>2</sub> source in atomic hydrogen-assisted molecular beam epitaxy."  
 Journal of Crystal Growth, 310, 16 (2008) 3710-3713
20. Y. Terada, S. Yoshida, A. Okubo, K. Kanazawa, M. Xu, O. Takeuchi and H. Shigekawa:  
 "Optical doping: active control of metal-insulator transition in nanowire."

Nano Lett., 8 11 (2008) 3577–3581

21. M. Xu, A. Okada, S. Yoshida and H. Shigekawa:  
"Self-organization of In nanostructures on Si surfaces"  
Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 073109
22. A. Okada, K. Kanazawa, K. Hayashi, N. Okawa, T. Kurita, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
"Anomalous light emission from metal phthalocyanine films on Au(111) activated by  
tunneling-current-induced surface plasmon"  
Appl. Phys. Express, 3 (2010) 015201.
23. Y. Terada, N. Takeuchi, S. Yoshida, A. Taninaka, O. Takeuchi and H. Shigekawa:  
"Effect of defects buried in pentacene/alkane/alkanethiol self-assembled monolayer/Au film on  
its electronic properties visualized by STM/STS"  
Jpn. J. Appl. Phys. (2010) in print.
24. Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
"Laser-combined STM for probing ultrafast transient dynamics"  
J. Phys.: Condensed Matter, (2010) in print.
25. Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
"Real space imaging of transient carrier dynamics by nanoscale pump-probe microscopy"  
submitted.

## (2)その他の著作物(総説、書籍など)

1. H. Shigekawa, O. Takeuchi, M. Aoyama, and H. Oigawa:  
"Development of femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy."  
Ouyou Butsuri, (in Japanese) 73, 10 (2004) 1318-1323.
2. 重川秀実、吉村雅満、坂田亮、河津璋:  
実戦ナノテクノロジー・走査プローブ顕微鏡と局所分光  
裳華房 (2005)
3. Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, O. Takeuchi, and H. Shigekawa:  
"Probing nanoscale world by laser-combined scanning tunneling microscopy."  
The Japan society of Applied Physics, Thin film and surface physics division,  
News Letter, (in Japanese) 128, (2006) 3-6.
4. H. Shigekawa, S. Yoshida, Y. Terada, O. Takeuchi and H. Oigawa:  
"Probing nanoscale carrier dynamics in semiconductors using laser combined STM."  
Solid State Physics (Kotai-butsumuri), 42, 501 (2007) 795-804
5. S. Yoshida, Y. Kanitani, O. Takeuchi and H. Shigekawa:  
"Light-modulated scanning tunneling spectroscopy on the analysis of nanoscale band structure  
and carrier dynamics."  
Hyomen Kagaku (in Japanese) 28, 2, (2007) 111-114
6. H. Shigekawa, A. Taninaka, S. Yoshida, A. Okada, Y. Terada and O. Takeuchi:  
"STM/STS for Evaluation of Physical Properties of Nanoparticles."  
Materials Integration ,(in Japanese) 21, 07 (2008) 10-20
7. Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa:  
"What can we probe using femtosecond time-resolved STM?"  
J. Vac. Soc. Jap. ,(in Japanese ) 51, 12 (2008) 801-806
8. 寺田康彦, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
"光STM"  
重川秀実, 吉村雅満, 河津璋 編:  
実験物理学シリーズ6巻  
走査プローブ顕微鏡 ー正しい実験とデータ解析のために必要なこと  
共立出版 (2009),
9. 寺田康彦, 重川秀実  
"先端追跡:回折限界を越えたイメージング手法"  
Hyomen Kagaku, Journal of the surface science society of Japan  
31, 1, (2009) 41.
10. H. Shigekawa, O. Takeuchi, Y. Terada and S. Yoshida  
『STM Based Techniques Combined with Optics』  
Handbook of Nanophysics, Taylor & Francis  
in print.

### (3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

① 招待講演 (国内会議 26 件、国際会議 16 件)

#### 国内

1. プローブ顕微鏡と分子ナノテクノロジー  
重川秀実  
分子ナノテクノロジー第 174 委員会第 13 回研究会(キャンパスイノベーションセンター)  
2005.3.11
2. フェムト秒時間分解走査プローブ顕微鏡技術の開拓と極限計測 (Development of femtosecond time-resolved scanning probe microscopy for nanoscale science and technology)  
重川秀実  
ナノプローブテクノロジー第 167 委員会 第 38 回研究会(東大・山上会館)  
2005.4.19.
3. SPM によるバイオセンシング  
重川秀実, 武内修, 谷中 淳, 保田諭  
2005 年(平成 17 年)秋季 第 66 回応用物理学会学術講演会(徳島大)  
〈シンポジウム「表面に生命(いのち)を見るー生体計測技術の新展開ー」  
2005.9.8
4. プローブ顕微鏡で探るナノスケール・ダイナミクス  
重川秀実  
文科省ナノテクノロジー総合支援プロジェクト九州大学拠点  
「第8回九州大学ナノ物質合成・解析支援講習・研究会」(九州大学)  
2006.7.25
5. 光とプローブ顕微鏡を融合して覗く世界ー局所バンド構造から超高速現象までー  
重川秀実  
2006 年秋季応用物理学会分科会主催シンポジウム(立命館大学)  
2006.8.29
6. ナノスケール微細構造ダイナミクス計測ー筑波大学産学交流の取組を含めてー  
重川秀実  
第5回つくばナノテクノロジー研究会ーナノ分析・計測のニーズ・シーズとビジネスチャンスー  
ー(つくば国際会議場)  
2006.10.30
7. 光励起 STM の開発とナノスケールマッピング  
武内修、重川秀実  
第 54 回表面科学研究会(東京大学本郷キャンパス 山上会館)  
2007. 3.9
8. 走査プローブ顕微鏡:STM  
重川秀実  
第 43 回 表面科学基礎講座(東京大学 理学部1号館 小柴ホール)  
2007. 6.27-29
9. 走査プローブ顕微鏡で覗く分子の世界  
重川秀実

- 錯体化学若手の会夏の学校 (箱根湯本ホテル)  
2007. 8.6-8
10. 走査トンネル顕微鏡によるナノスケールでの構造制御と物性研究  
重川秀実  
日本セラミックス協会 第 20 回秋季シンポジウム (名古屋工業大学)  
2007. 9.12-14
  11. 光励起 STM の開発と半導体局所キャリアダイナミクス解析への応用  
重川秀実  
物性研短期研究会「低温走査トンネル顕微鏡の現状と展望」(東京大学物性研究所)  
2007. 10.12-13
  12. 光励起 STM による局所ポテンシャル・キャリアダイナミクス計測  
重川秀実  
学振 154 委員会研究会「固体表面・界面の光計測」(アジュール竹芝)  
2007. 10.24
  13. Femtosecond time-resolved STM and its application to the analysis of ultrafast dynamics in the nanoscale world  
重川秀実  
合同シンポジウム「凝縮系の超高速現象とコヒーレント制御」(東京工業大学国際交流会館多目的ホール)  
2008. 2.21-22
  14. 光 STM によるナノスケールキャリアダイナミクス計測  
重川秀実  
第 7 回メゾテクノロジーフォーラム 一原子・ナノ・メゾにわたる表面・内部の電子状態分布計測の最先端— (産業技術総合研究所つくば中央第2事業所情報新棟交流会議室)  
2008. 2.29
  15. STM で覗くナノスケール光誘起ダイナミクス  
重川秀実  
第2回「光と物質」研究会 (筑波大学総合研究棟)  
2008. 3.3
  16. ナノスケールキャリアダイナミクス計測  
重川秀実  
ナノエレクトロニクスプロジェクト  
「シングルナノワイアトランジスタの知識統合的研究開発」全体会議  
(産総研つくば 中央第4)  
2008. 5.15
  17. 走査プローブ顕微鏡:STM  
重川秀実  
第 45 回 表面科学基礎講座 (東京大学 理学部1号館 小柴ホール)  
2008. 7.2-4
  18. 光励起 STM を用いた半導体ナノスケール評価技術  
武内修、重川秀実  
理研・次世代ナノシンポジウム (理化学研究所、仁科ホール)  
2008. 8.22

19. 走査トンネル顕微鏡と局所分光ー光との融合で広がる世界ー  
重川秀実  
表面化学サロン  
(筑波大学総合研究棟 B0110)  
2008. 12.15
20. フェムト秒時間分解 STM によるナノスケールイメージング  
重川秀実  
日本光学会(応用物理学会)光波シンセシス研究グループ主催  
第16回研究会「超高速現象の可視化」(千葉大学)  
2009. 7.3
21. 光 STM によるキャリアダイナミックスのナノスケールイメージング  
重川秀実  
プローブ顕微鏡(SPM)による表面分析研究会  
(愛知県産業貿易館西館6階 視聴覚室)  
2009. 8.21
22. Femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy  
Y. Terada, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
理研シンポジウム/RIKEN Symposium 第1回ナノ分光部会シンポジウム  
主題「SPM を用いたナノ分光及びセンシング技術」  
“SPM based nanospectroscopy/sensing techniques” (理化学研究所(和光))  
2009. 11.6
23. 光 STM によるナノスケールキャリアダイナミックス計測  
重川秀実  
つくば半導体コンソーシアム M/C net(計測評価技術ネットワーク) (エポカルつくば)  
2009. 11.24
24. 走査プローブ顕微鏡の基礎と極限計測  
重川秀実  
第48回 表面科学基礎講座 -表面・界面分析の基礎と応用-  
(神戸大学 瀧川記念学術交流会館)  
2009. 11.26
25. STM によるキャリアダイナミックス計測  
シンポジウム:ナノ材料・デバイスのためのプローブ顕微鏡技術  
重川秀実  
2010年(平成22年)春季 第57回応用物理学関係連合講演会  
(東海大学湘南キャンパス)  
2010. 3.17-20
26. レーザー励起 STM による局所分光  
シンポジウム:ナノスケール分光法による顕微評価・解析技術の最前線  
寺田康彦、吉田昭二、武内修、重川秀実  
2010年(平成22年)春季 第57回応用物理学関係連合講演会  
(東海大学湘南キャンパス)  
2010. 3.17-20

## 国外

1. Scanning probe microscopy on the nano-scale functional materials  
H.Shigekawa  
Japana-Syngapore joint symposium on nanoscience and technology (Singapore)  
2004.11.1-4
2. Development of femtosecond-angstrom technology for nanoscience  
H.Shigekawa  
The IUMRS International Conference in Asia (IUMRS-ICA-2004) (Hsinchu, Taiwan)  
2004.11.16-18
3. Development of Femtosecond-Angstrom Technology for Nanoscience  
H.Shigekawa  
The First Workshop on Nanoscale Sensing and Manipulation (Taipei, Taiwan)  
2004.11.17-18
4. Probing subpicosecond dynamics using pulsed laser combined scanning tunneling microscopy.  
H.Shigekawa  
International symposium on Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing (Convention Center, Osaka University)  
2004.12.6-7
5. Potential capability of the femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy for nanoscale science and technology  
H. Shigekawa  
International symposium on application of quantum beam 2005 (Kobe)  
2005.10.18-19
6. Development of femtosecond time-resolved scanning probe microscopy for nanoscale science and technology  
H. Shigekawa  
MRS Fall Meeting 2005(Boston, USA)  
2005.11.28.-12.2
7. Probing nanoscale dynamics by laser combined scanning tunneling microscopy  
H. Shigekawa  
Quantum Nanoelectronics Workshop (Sapporo Convention Center)  
2006.2.27-3.1
8. Probing nanoscale dynamics using laser-combined scanning tunneling microscopy  
H. Shigekawa, O. Takeuchi, S. Yoshida, M. Aoyama, Y. Terada and H. Kondo  
International Conference on Nanoscience and Technology -NANO9 meets STM'06- (Basel, Switzerland)  
2006.7.30-8.4
9. Nanoscale-Probe of Photoinduced Dynamics using Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy and Related Techniques  
H. Shigekawa  
The 7th International Conference on Nano-Molecular

- Electronics(ICNME2006)(International Conference Center Kobe)  
2006.12.13-15
10. Nanoscale-Mapping of Photoinduced Carrier Dynamics - Results by 2nd Generation Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy-  
H. Shigekawa  
International Session, Physical Society Annual Meeting (Taoyuang, Taiwan)  
2007. 1.23-25
  11. How far can we go with laser combined STM?  
H. Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8
  12. Imaging carrier dynamics in nanoscale potential landscapes by laser-combined scanning tunneling microscopy  
H. Shigekawa  
"Unifying themes in condensed matter" at the Aspen Center for Physics  
(Aspen Center for Physics,USA)  
2009. 1.11-17
  13. Imaging carrier dynamics in nanoscale potential landscapes by laser-combined scanning tunneling microscopy  
Hidemi Shigekawa  
JST-DFG「ナノエレクトロニクス」日独合同ワークショップ (からすま京都ホテル)  
2009. 1.21-23
  14. Studies on laser-combined STM  
重川秀実  
2nd Tsukuba-Shinchu Bilateral Symposium on Advanced Materials Science and Technology (TSAMS2009) (エポカル つくば国際会議場)  
2009. 10.10
  15. Laser-combined STM and probing ultrafast transient dynamics  
H. Shigekawa  
American Physical Society APS March Meeting 2010 (Portland, Oregon)  
2010. 3.15-19
  16. Real space imaging of transient dynamics by nanoscale pump-probe microscopy (tentative)  
Hidemi Shigekawa  
the 18<sup>th</sup> International Vacuum Congress, International Conference on Nanoscience and Technology, the 14<sup>th</sup> International Conference on Solid Surface, the 5<sup>th</sup> Vacuum and Surface Sciences Conference of Asia and Australia (Beijing, China)  
2010. 8.23-27



② 口頭発表 (国内会議 23 件、国際会議 12 件)

## 国内

1. STMによる表面フォトルテージ測定手法の開発  
吉田昭二、菊地純一、武内修、重川 秀実  
21 世紀 COE プログラム研究発表会「第 2 回 ヤングパワーによる学際融合研究」  
(筑波大学)  
2004.12.20
2. 光変調トンネル分光法と局所仕事関数計測  
吉田昭二、菊地純一、蟹谷裕也、武内修、重川秀実  
局所仕事関数研究会(筑波大学東京キャンパス)  
2005.12.26.
3. 光STMを用いた半導体ナノ物性研究  
武内修  
物理工学系セミナー(筑波大学)  
2006.1.18
4. 光変調STMによる半導体局所バンド構造解析  
菊地純一、吉田昭二、蟹谷裕也、武内 修、重川秀実  
筑波大学ナノサイエンス特別プロジェクト「平成17年度研究成果発表会」  
2006.3.9
5. ポンププローブ法による GaNAs の超高速光誘起応答解析 -- フェムト秒時間分解STM  
による半導体解析手法の確立に向けて --  
寺田康彦、近藤博行、青山正宏、武内 修、重川秀実  
筑波大学ナノサイエンス特別プロジェクト「平成17年度研究成果発表会」  
2006.3.9
6. Multi-stacking of InAs quantum dots on GaAs (001) substrates grown by  
strain-compensation technique  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada  
第 25 回電子材料シンポジウム(ホテルサンバレー富士見)  
2006.7
7. 光励起 STM を用いた GaAs p-n 接合界面のナノスケール分光  
吉田昭二、重川秀実  
第 6 回ドーパント計測研究会(エポカル、つくば国際会議場)  
2007. 1.19
8. STM-induced photoemission spectroscopy on a rubrene thin film on Au  
A. Okada and H. Shigekawa  
21st Century Center of Excellence Program (筑波大学)  
2007. 2.22
9. Growth of In-Si(311) surface by molecular beam epitaxy  
M.Xu and H. Shigekawa  
21st Century Center of Excellence Program (筑波大学)  
2007. 2.22

10. STM study of anisotropic 2D electronic gas states realized in glycine/Cu(100) interface  
K. Kanazawa, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
21st Century COE Program, University of Tsukuba “Promotion of Creative Interdisciplinary Materials Science for Novel Functions”  
2007. 3.
11. 光励起 STM を用いた半導体超高速キャリアダイナミクス計測  
吉田昭二、寺田康彦、武内修、重川秀実  
第 7 回ドーパント計測研究会(エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.5
12. 光励起 STM を用いた半導体ナノスケール評価技術  
武内修, 重川秀実  
理研・次世代ナノシンポジウム (理化学研究所、仁科ホール)  
2008. 8.22
13. In/Si(111)ナノワイヤー金属絶縁体転移の光制御  
大久保淳史, 寺田康彦, 吉田昭二, 武内修, 重川 秀実  
2008 年秋季 第 69 回応用物理学学会学術講演会 (中部大学)  
2008. 9.2-5
14. 多元蒸着膜で形成された有機 EL 素子構造からの STM 発光  
大川直広, 岡田有史, 金澤研, 林究, 武内修, 重川秀実  
2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (筑波大学)  
2009. 3.30-4.2
15. As<sub>2</sub> 分子線による GaAs(001)基板上多重積層 InAs 量子ドットの特性改善  
高田彩未、大島隆治、庄司靖、重川秀実、岡田至崇  
2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (筑波大学)  
2009. 3.30-4.2
16. 時間分解 STM による PIN 接合のキャリアダイナミクスマッピング  
大久保淳史, 寺田康彦, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (筑波大学)  
2009. 3.30-4.2
17. STM 点接触法を用いた単一分子コンダクタンスの動的計測  
石井啓祐, 吉田昭二, 奥津吉隆, 中村徹, 武内修, 重川秀実  
2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (筑波大学)  
2009. 3.30-4.2
18. ペンタセン薄膜におけるバンド構造の空間揺らぎ  
竹内紀晶、寺田康彦、吉田昭二、武内修、重川秀実  
2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会 (筑波大学)  
2009. 3.30-4.2
19. 時間分解 STM 信号の物理起源と空間分解能  
寺田康彦、吉田昭二、大久保淳史、横田統徳、武内修、重川秀実  
2009 年秋季 第 70 回応用物理学学会学術講演会 (富山大学)  
2009. 9.8-11
20. STM 点接触法による Si-単一分子接合の作製及び電気伝導計測  
石井啓祐, 吉田昭二, 中村徹, 武内修, 重川秀実

- 2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学)  
2009. 9.8-11
21. グリシン/Cu(111)テンプレートにより作製した孤立フラレン分子構造の解析と制御  
黄慧, 金澤研, 谷中淳, 武内修, 重川 秀実  
2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学)  
2009. 9.8-11
22. シリコン電極を用いた単一分子の STM 電気伝導計測  
石井啓祐, 吉田昭二, 中村徹, 武内修, 重川秀実  
第 29 回表面科学 学術講演会 (タワーホール船堀)  
2009. 10.29
23. STM 発光分光法による有機EL素子の局所発光特性評価  
栗田丈裕, 岡田有史, 金澤研, 大川直広, 武内修, 重川秀実  
2010年(平成22年)春季 第57回応用物理学関係連合講演会  
(東海大学湘南キャンパス)  
2010. 3.17-20

## 国際

1. Nanoscale Band Structure Analysis of Semiconductor through Surface Photovoltage Observation by STM  
S. Yoshida, Y. Kanitani, J. Kikuchi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
13th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and Related Techniques (STM'05) (Sapporo Convention Center)  
2005.7.3-8
2. Long wavelength InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs strain compensating layers  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada  
12th International conference on Modulated Semiconductor Structures, Albuquerque, USA  
2005.7
3. Effect of strain compensation on multi-stacking of InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs layers  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada  
2005 MRS fall Meeting, Boston, USA  
2005.11
4. Carrier dynamics in optically excited  $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$  investigated by optical pump-probe spectroscopy and time-resolved scanning tunneling microscopy  
Y. Terada, O. Takeuchi, M. Aoyama, H. Kondo and H. Shigekawa  
46th IUVESTA Workshop & 5th International Symposium on Ultrafast Surface Dynamics (Abashiri)  
2006.5.21-25
5. Fabrication of Multi-layer Self-assembled InAs Quantum Dots for High-Efficiency Solar Cells  
R. Oshima, H. Komiyama, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada

- 4th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion, Hawaii, USA  
2006.5
6. InAs self-assembled quantum dots superlattice structure fabricated by strain compensation technique  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada  
28th International Conference on Physics of Semiconductors, Vienna, Austria  
2006.7
  7. Real-Space Observation of Carrier Flow through an Operating GaAs p-n Junction Demonstrated by Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy  
S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 16th International Microscopy Congress -IMC16-(Sapporo Convention Center)  
2006.9.3-8
  8. Optical properties of stacked InAs self-organized quantum dots on InP (311)B  
Ryuji Oshima, Kouichi Akahane, Masahiro Tsuchiya, Hidemi Shigekawa, and Yoshitaka Okada  
14th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Waseda, Japan  
2006.9
  9. Novel control of metal-insulator transition in nanowire by optical doping  
Y. Terada, S. Yoshida, A. Okubo, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
  10. STM study of anisotropic free electron-like states realized in amino acids/Cu(100) interfaces  
K. Kanazawa, A. Taninaka, K. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
  11. Self-assembled structure of glycine on Cu(111) surface  
H. Huang, K. Kanazawa, A. Taninaka, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第2回学際物質科学国際シンポジウム(ISIMS-2009)  
(エポカル つくば国際会議場)  
2009. 3.9-10
  12. Silicon based single molecular junction fabricated by STM point contact method  
S. Yoshida, K. Ishii, T. Nakamura, O. Takeuchi, and, H. Shigekawa  
17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2009. 12.10-12

③ ポスター発表 (国内会議 40 件、国際会議 62 件)

## 国内

1. 低温 Si(100)表面相に及ぼす STM 探針の影響  
吉田昭二, 木村知彦, 武内修, 重川秀実  
第 24 回表面科学講演大会  
2004.11.9
2. Self-assembled growth of long wavelength GaInNAs quantum dots  
R. Oshima, K. Uehara, H. Shigekawa, and Y. Okada  
Joint Meeting of FIMS/ITS-NS/CTC/PLASMA-2004(EPOCAL, Tsukuba)  
2004.11.24-28
3. 局所障壁計測による表面フォトルテージ解析 (Surface Photovoltage Analysis by Local Barrier Height Measurement)  
菊地純一, 吉田昭二, 武内修, 重川 実  
2005 年(平成 17 年)春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会(埼玉大)  
2005.3.29-4.1
4. 時間分解トンネル電流信号と光励起への非線形性 (Time-resolved Tunnel Current Signal Caused by Nonlinear Response to Photoexcitation)  
武内修, 近藤博行, 青山正宏, 谷中淳, 寺田康彦, 重川秀実  
2005 年(平成 17 年)秋季 第 66 回応用物理学学会学術講演会(徳島大)  
2005.9.7-11
5. STM/STS による Glycine/Cu(100)超構造の電子状態に関する研究 (STM/STS study on the electronic structure of Glycine/Cu(100) superstructures)  
金澤研, 小西泰彰, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
2005 年(平成 17 年)秋季 第 66 回応用物理学学会学術講演会(徳島大)  
2005.9.7-11
6. 表面フォトルテージ観察による pn 接合のバンド構造解析 (Band Structure Analysis of pn-junction by Surface Photovoltage Observation)  
蟹谷裕也, 吉田昭二, 大島隆治, 菊地純一, 武内修, 岡田至崇, 重川秀実  
2005 年(平成 17 年)秋季 第 66 回応用物理学学会学術講演会(徳島大)  
2005.9.7-11
7. GaNAs 歪み補償層を用いた InAs 自己組織化量子ドットの多重積層化  
大島隆治, 橋本貴幸, 重川秀実, 岡田至崇  
2005 年(平成 17 年)秋季 第 66 回応用物理学学会学術講演会(徳島大)  
2005.9.7-11
8. NC-AFM によるフィードバック回路を用いない静電ポテンシャル測定 (Electrostatic Potential Measurement by nc-AFM without Feedback Circuit)  
生頼義久, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
第 25 回表面科学講演大会 (Omiya SonicCity)  
2005.11.17-19
9. 光変調トンネル分光法による GaAs-pn 接合のナノスケールバンド構造解析  
蟹谷裕也, 吉田昭二, 大島隆治, 菊地純一, 武内修, 岡田至崇, 重川秀実

- 第 25 回表面科学講演大会 (Omiya SonicCity)  
2005.11.17-19
10. KFM によるフィードバック回路を用いない静電ポテンシャル測定 (Contact Potential Measurement by Kelvin probe Force Microscopy without Feed Back Circuit)  
武内修, 生頼義久, 吉田昭二, 重川秀実  
2006 年春季 第 53 回応用物理学関係連合講演会(武蔵工業大学)  
2006.3.22-26
  11. 色素分子/Au 系の大气中 STM における発光分光 (STM-induced photoemission spectroscopy on dye molecules/Au system)  
岡田有史, 金澤研, Berthe Maxime, 林究, 武内修, 重川秀実  
2006 年春季 第 53 回応用物理学関係連合講演会(武蔵工業大学)  
2006.3.22-26
  12. STM 点接触法による単一分子の伝導測定 (Single Molecular Conductance Measured by "Point Contact Method" with STM)  
奥津吉隆, 保田諭, 佐々木慈郎, 吉田昭二, 中村徹, 武内修, 重川秀実  
2006 年春季 第 53 回応用物理学関係連合講演会(武蔵工業大学)  
2006.3.22-26
  13. 光 STM を用いた p-n 接合中を流れる順方向電流の実空間イメージング (Real-space imaging of carrier flow in the forward biased p-n junction by laser combined Scanning Tunneling Microscopy)  
吉田昭二, 蟹谷裕也, 大島隆治, 武内修, 岡田至崇, 重川秀実  
2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
  14. Glycine 自己組織化単分子膜/ Cu(100): 電子定在波の発現と異方伝導特性 (Anisotropic electron standing wave induced by the self-organized of Glycine molecules on Cu(100))  
金澤研, 小西泰彰, 道祖尾恭之, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
  15. フェムト秒時間分解 STM 計測 (GaNAs) に現れる超高速光誘起応答の起源 (Origin of the Ultrafast Photo-induced Phenomena in GaNAs Probed by Femtosecond Time-resolved STM)  
寺田康彦, 近藤博行, 青山正宏, 武内修, 重川秀実  
2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
  16. InGaAs/GaNAs 系多重量子井戸型太陽電池の作製  
佐々木直行, 清水由紀子, 大島隆治, 岡田至崇  
2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
  17. GaInNAs 量子ドット成長における RF-プラズマ源からのイオン除去効果の評価  
中村悠太, 大島隆治, 橋本貴幸, 重川秀実, 岡田至崇  
2006 年秋季 第 67 回応用物理学学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
  18. InAs 量子ドットの多重積層化における中間層構造の検討  
橋本貴幸, 大島隆治, 中村悠太, 重川秀実, 岡田至崇

- 2006 年秋季 第 67 回応用物理学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
19. 積層自己組織化 InAs 量子ドット太陽電池の作製  
小宮山浩之、大島隆治、橋本貴幸、重川秀実、岡田至崇  
2006 年秋季 第 67 回応用物理学会学術講演会(立命館大学)  
2006.8.29-9.1
  20. 光 STM を用いた GaAs p-n 接合のナノスケールキャリア輸送計測(Probing nanoscale carrier transport in GaAs p-n junction by laser combined Scanning Tunneling Microscopy)  
吉田昭二、蟹谷裕也、大島隆治、武内修、岡田至崇、重川秀実  
第26回表面科学講演大会(大阪大学コンベンションセンター)  
2006.11.6-8
  21. フェムト秒時間分解 STM で覗く GaNAs の超高速光誘起キャリアダイナミクス(Ultrafast photoinduced carrier dynamics in GaNAs probed by femtosecond time-resolved scanning tunnelling microscopy)  
青山正宏、近藤博行、寺田康彦、武内修、重川秀実  
第26回表面科学講演大会(大阪大学コンベンションセンター)  
2006.11.6-8
  22. STM 点接触法による単一分子伝導の精密測定 -S/Se 末端基の影響とその特性評価-(Precise and Reliable Approach to Single-Molecule Conductance Measurement by "Point Contact Method" with STM)  
奥津吉隆、保田諭、佐々木慈郎、吉田昭二、中村徹、谷中淳、武内修、重川秀実  
第26回表面科学講演大会(大阪大学コンベンションセンター)  
2006.11.6-8
  23. 温度可変4探針走査トンネル顕微鏡の開発(Development of variable-temperature four-probe scanning tunneling microscope)  
市川慶太郎、石橋聡、谷中淳、武内修、重川秀実  
第26回表面科学講演大会(大阪大学コンベンションセンター)  
2006.11.6-8
  24. 金属及びグラファイト上に作製したルブレン分子膜の STM 発光分光 (STM light emission spectroscopy on Rubrene thin films on Au and graphite)  
林究、岡田有史、金澤研、Maxime Berthe、武内修、重川秀実  
第26回表面科学講演大会(大阪大学コンベンションセンター)  
2006.11.6-8
  25. 有機分子多元蒸着膜の STM 発光  
大川直広、岡田有史、金澤研、林究、武内修、重川秀実  
2007 年秋季 第 68 回応用物理学会学術講演会 (北海道工業大学)  
2007. 9.4-8
  26. STM による単一カーボンナノチューブの欠陥生成と修復  
海老根裕太、Maxime Berthe、吉田昭二、谷中淳、鈴木哲、住友弘二、武内修、重川秀実  
2007 年秋季 第 68 回応用物理学会学術講演会 (北海道工業大学)  
2007. 9.4-8
  27. STM 点接触法による単一分子の伝導測定 ~何が特性の揺らぎを引き起こすのか?~  
奥津吉隆、吉田昭二、保田諭、佐々木慈郎、中村徹、武内修、重川秀実

- 2007 年秋季 第 68 回応用物理学会学術講演会 (北海道工業大学)  
2007. 9.4-8
28. 温度可変4探針STM  
武内修, 市川慶太郎, 石橋聡史, 谷中淳, 重川秀実  
第 27 回表面科学講演大会 (東京大学生産技術研究所(駒場)コンベンションホール)  
2007. 11.1-3
29. 半導体原子欠陥とポテンシャルの揺らぎ -光 STM によるナノスケールでの計測と評価-  
吉田昭二, 蟹谷裕也, 武内修, 重川秀実  
第 27 回表面科学講演大会 (東京大学生産技術研究所(駒場)コンベンションホール)  
2007. 11.1-3
30. STM を用いたカーボンナノチューブの可逆的な欠陥形成・修復  
吉田昭二, ベルト・マキシム, 海老根裕太, 武内修, 重川秀実  
第 27 回表面科学講演大会 (東京大学生産技術研究所(駒場)コンベンションホール)  
2007. 11.1-3
31. フェムト秒時間分解走査トンネル顕微鏡による WSe<sub>2</sub> の光誘起キャリアダイナミクス計測  
近藤博行, 寺田康彦, 吉田昭二, 海老澤尚宏, 武内修, 重川秀実  
第 27 回表面科学講演大会 (東京大学生産技術研究所(駒場)コンベンションホール)  
2007. 11.1-3
32. Nanoscale mapping of carrier dynamics in PIN junction using time-resolved STM  
寺田康彦, 近藤博行, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会 (日本大学理工学部 船橋キャンパス)  
2008. 3.27-30
33. STM-induced light emission mechanism in rubrene/Au(111) films  
岡田有史, 金澤研, 林究, 大川直広, 武内修, 重川秀実  
2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会 (日本大学理工学部 船橋キャンパス)  
2008. 3.27-30
34. STM study of 2D electronic states formed in  $\beta$ -alanine/Cu(100)  
金澤研, 中村圭佑, 谷中淳, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実  
2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会 (日本大学理工学部 船橋キャンパス)  
2008. 3.27-30
35. グリシン/Cu(111)超構造の STM/STS  
金澤研, 谷中淳, 武内修, 重川秀実  
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会学術講演会 (中部大学)(ポスター)  
2008. 9.2-5
36. InGaAs/GaNAs 歪み制御層を用いた GaAs(001)基板上 InAs 量子ドットの発光特性  
高田彩未, 大島隆治, 庄司靖, 重川秀実, 岡田至崇  
2008 年秋季 第 69 回応用物理学会学術講演会 (中部大学)  
2008. 9.2-5
37. フェムト秒時間分解走査プローブ顕微鏡技術の開拓と極限計測 —極微世界の高速現象をプローブ顕微鏡で探る—  
寺田康彦, 吉田昭二, 重川秀実



題 47 回 2009 分析展 (幕張メッセ国際展示場)

2009. 9.2-4

38. フタロシアニン系有機分子のSTM発光

栗田丈裕, 岡田有史, 金澤研, 大川直広, 武内修, 重川秀実

2009 年秋季 第 70 回応用物理学会学術講演会 (富山大学)

2009. 9.8-11

39. STM/STS によるペンタセン薄膜バンド構造の空間揺らぎマッピング

竹内紀晶, 寺田康彦, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実

第 29 回表面科学 学術講演会 (タワーホール船堀)

2009. 10.27

40. フェムト秒時間分解 STM の空間分解能

横田統徳, 寺田康彦, 大久保淳史, 吉田昭二, 武内修, 重川秀実

第 29 回表面科学 学術講演会 (タワーホール船堀)

2009. 10.27

## 国際

1. Improvement of detection ability of Shaken-Pulse-Pair-Excited STM

M. Aoyama, O. Takeuchi and H. Shigekawa

The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy

(Atagawa Heights, Shizuoka)

2004.12.9-11

2. Glycine/Cu(100) surface structures induced by the chirality of adsorbates

K. Kanazawa, Y. Konishi, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa

The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy

(Atagawa Heights, Shizuoka)

2004.12.9-11

3. Investigates of Surface Photovoltage via STM Barrier Height Methods

J. Kikuchi, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa

The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy

(Atagawa Heights, Shizuoka)

2004.12.9-11

4. Nanoscale probe by laser combined scanning tunneling microscopy

S. Yoshida, M. Aoyama, J. Kikuchi, O. Takeuchi and H. Shigekawa

The Third International Symposium on Nanotechnology (JAPAN NANO 2005)

(東京ビッグサイト)

2005.2.21-22

5. 1.3  $\mu$  m emission from InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs strain-compensating layers

R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada

International Symposium on Quantum Dots and Photonic Crystals 2005

(Toranomon Pastoral)

2005.3.7-8

6. Electronic Structures of Individual Poly(3-hexylthiophene) Nanowires Investigated by STS  
Y. Terada, S. Heike, Y. Suwa, T. Hashizume and H. Shigekawa  
13th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and  
Related Techniques (STM'05) (Sapporo Convention Center)  
2005.7.3-8
7. Glycine/Cu(100) Superstructures Studied By STM/STS  
K. Kanazawa, Y. Konishi, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
13th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and  
Related Techniques (STM'05) (Sapporo Convention Center)  
2005.7.3-8
8. Ultrafast Measurement with Shaken-Pulse-Pair-Excited STM in Longer and Shorter Time  
Scales  
M. Aoyama, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
13th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and  
Related Techniques (STM'05) (Sapporo Convention Center)  
2005.7.3-8
9. Development of Radio Frequency STM for ESR Spin Detection  
E. Matsuyama, S. Yasuda, O. Takeuchi, H. Oigawa, J. Nakamura and H. Shigekawa  
13th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and  
Related Techniques (STM'05) (Sapporo Convention Center)  
2005.7.3-8
10. Long wavelength InAs self-assembled quantum dots embedded in GaNAs strain  
compensating layers  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa, and Y. Okada  
12th International conference on Modulated Semiconductor Structures, Albuquerque, USA  
2005.7
11. Band Structure Analysis of pn-junction by Surface Photovoltage Analysis using  
Light-Modulated Scanning Tunneling Microscopy  
Y. Kanitani, S. Yoshida, R. Oshima, J. Kikuchi, O. Takeuchi, Y. Okada and H. Shigekawa  
International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (Omiya SonicCity)  
2005.11.14-17
12. Are we measuring real local barrier height of semiconductors?  
J. Kikuchi, Y. Kanitani, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (Omiya SonicCity)  
2005.11.14-17
13. Measurement of Single Molecular Conductance by "Point Contact Method" with Scanning  
Tunnelling Microscopy  
J. Sasaki, S. Yasuda, S. Yoshida, Y. Okutsu, T. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
International symposium on molecular scale electronics (AIST, Tsukuba)  
2005.12.5.-12.6.
14. Kelvin Force Microscopy without Feedback Control of Bias Voltage  
O. Takeuchi, Y. Ohrai, S. Yoshida and H. Shigekawa  
International Conference on Nanoscience and Technology -NANO9 meets STM'06- (Basel,

- Switzerland)  
2006.7.30–8.4
15. Shaken-pulse-pair excited STM to probe subpicosecond dynamics  
Y. Terada, O. Takeuchi, M. Aoyama, H. Kondo, and H. Shigekawa  
International Conference on Nanoscience and Technology –NANO9 meets STM'06– (Basel, Switzerland)  
2006.7.30–8.4
  16. Nanoscale Imaging of the Carrier Transport in an Operating GaAs p-n Junction by Laser-Combined Scanning Tunneling Microscopy  
S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
International Conference on Nanoscience and Technology –NANO9 meets STM'06– (Basel, Switzerland)  
2006.7.30–8.4
  17. Structures and STM-induced reactions of the Glycine molecules adsorbed on a Cu(100) surface  
K. Kanazawa, Y. Konishi, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
International Conference on Nanoscience and Technology –NANO9 meets STM'06– (Basel, Switzerland)  
2006.7.30–8.4
  18. Ultrafast carrier dynamics in optically excited semiconductors probed by time-resolved scanning tunneling microscopy  
Y. Terada, M. Aoyama, H. Kondo, N. Ebisawa, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7–9
  19. Nanoscale Carrier Flow in an Operating GaAs p-n junction imaged by Light-Modulated Scanning Tunneling Spectroscopy  
S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7–9
  20. Ultrafast photo-induced carrier dynamics observed by pulse-pair excited scanning tunneling microscopy  
M. Aoyama, H. Kondo, N. Ebisawa, Y. Terada, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7–9
  21. STM-induced photoemission spectroscopy on rubrene thin films –Does surface plasmon play an essential role for photoemission?–  
A. Okada, K. Kanazawa, M. Berthe, K. Hayashi, N. Okawa, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7–9

22. STM/STS on the standing wave of anisotropic dispersion relations observed in self-assembled glycine monolayers on Cu(100)  
K. Kanazawa, Y. Konishi, Y. Sainoo, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7-9
23. Single Molecular Conductance Studied by "Point Contact Method using Scanning Tunnelling Microscopy  
J. Sasaki, Y. Okutsu, S. Yoshida, T. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7-9
24. Formation of In nanowires realized on Si(113) Surface  
M. Xu, A. Okada, S. Yoshida, K. Kanazawa, K. Hayashi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2006.12.7-9
25. What can we observe by Femtosecond time-resolved STM? - Carrier dynamics probed with ultimate spatial and temporal resolutions -  
Y. Terada, H. Kondo, S. Yoshida, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-9) (Komaba Research Campus of The University of Tokyo)  
2007. 11.11-15
26. What are we probing using time-resolved scanning tunneling microscopy?  
Y. Terada, S. Yoshida, H. Kondo, A. Okubo, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8
27. STM/STS study of 2D electronic gas states formed in amino acid films /Cu(100) interface  
K. Kanazawa, S. Yoshida, A. Taninaka, K. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8
28. Plasmon-mediated light emission from rubrene/Au(111) induced by scanning tunneling microscopy  
A. Okada, K. Hayashi, K. Kanazawa, N. Okawa, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8
29. STM-induced light emission from organic multilayer structures  
N. Okawa, A. Okada, K. Kanazawa, K. Hayashi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8

30. Radio frequency detection system designed for scanning probe microscopy  
E. Matsuyama, H. Oigawa, O. Takeuchi, S. Nemoto, K. Hirasawa, J. Nakamura and Hidemi Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8
31. Indium Nanowires and Nanodots Grown on In/Si(111) Surface  
M. Xu, A. Okada, S. Yoshida, K. Kanazawa, K. Hayashi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Atagawa Heights, Shizuoka)  
2007. 12.6-8
32. Nanoscale imaging of carrier dynamics in semiconductor heterostructures by femtosecond time-resolved STM  
Y. Terada, S. Yoshida, H. Kondo, A. Okubo, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
第1回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2008) (エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.13-14
33. Influence of junction geometry on single molecular conductance investigated by STM point contact method  
S. Yoshida, Y. Okutsu, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
第1回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2008) (エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.13-14
34. Four-Probe Scanning Tunneling Microscope with True Atomic Resolution  
K. Ichikawa, S. Ishibashi, A. Taninaka, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
第1回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2008) (エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.13-14
35. Two-dimensional electronic structures realized in self-assembled monolayers of amino acids on Cu(100) surface  
K. Kanazawa, S. Yoshida, A. Taninaka, K. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第1回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2008) (エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.13-14
36. Plasmon-mediated multiple excitations observed in STM-induced light emission from rubrene/Au(111) thin films  
A. Okada, K. Kanazawa, K. Hayashi, N. Okawa, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第1回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2008) (エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.13-14
37. STM-induced light emission from an organic-LED structure  
N. Okawa, A. Okada, K. Kanazawa, K. Hayashi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第1回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2008) (エポカル つくば国際会議場)  
2008. 3.13-14
38. Optical control of metal-insulator transition in nanowire  
Y. Terada, S. Yoshida, A. Okubo, M. Xu, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
第4回真空・表面科学アジア・オーストラリア会議 (VASSCAA-4)  
(くにびきメッセ)  
2008. 10.28-31

39. Screened Coulomb potential around charged defects on GaAs(110) imaged by Light-Modulated Scanning Tunneling Microscopy  
S. Yoshida, Y. Kanitani, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第4回真空・表面科学アジア・オーストラリア会議 (VASSCAA-4)  
(くにびきメッセ)  
2008. 10.28-31
40. STM/STM study on the glycine/Cu(111) self-assembled structures  
K. Kanazawa, A. Taninaka, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
第4回真空・表面科学アジア・オーストラリア会議 (VASSCAA-4)  
(くにびきメッセ)  
2008. 10.28-31
41. STM/STS study of anisotropic standing waves realized in self-assembled monolayers of amino acids on Cu(100) surface  
K. Kanazawa, A. Taninaka, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
表面科学とナノテクノロジーに関する国際シンポジウム (ISSS-5)  
(早稲田大学国際会議場)  
2008. 11.9-13
42. STM-induced light emission from an organic-LED structure  
N. Okawa, A. Okada, K. Kanazawa, K. Hayashi, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
表面科学とナノテクノロジーに関する国際シンポジウム (ISSS-5)  
(早稲田大学国際会議場)  
2008. 11.9-13
43. Optical Control of Metal-Insulator Phase Transition in In/Si(111) Nanowire  
A. Okubo, Y. Terada, S. Yoshida, M. Xu, O. Takeuchi, H. Shigekawa  
表面科学とナノテクノロジーに関する国際シンポジウム(ISSS-5)  
(早稲田大学国際会議場)  
2008. 11.9-13
44. Four-Probe Scanning Tunneling Microscope  
S. Ishibashi, Y. Ebine, A. Taninaka, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
45. Surface passivation effect in (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SX-treated GaAs probed by laser-combined scanning tunneling microscopy  
H. Oigawa, Y. Terada, A. Okubo, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
46. Nanoscale carrier dynamics in GaInNAs p-n junction investigated by Laser Combined Scanning Tunneling Microscopy  
S. Yoshida, Y. Terada, A. Ohkubo, N. Miyashita, R. Oshima, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13

47. Observation of surface reconstructions and nanometer sized structures formed on In/Si(311)  
M. Xu, A. Okada, S. Yoshida, K. Kanazawa, N. Ookawa, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
48. Carrier dynamics influenced by surface states on Co/GaAs  
A. Okubo, Y. Terada, S. Yoshida, M. Yokota, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
49. Precise measurement of single molecular conductance using STM point contact method  
K. Ishii, S. Yoshida, T. Nakamura, O. Takeuchi, and, H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
50. A novel electronic structure realized by glycine /Cu(111) self-assembly  
H. Huang, K. Kanazawa, A. Taninaka, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2008. 12.11-13
51. Conductance of Single Molecules Chemically Bonded to Metal Electrodes  
K. Ishii, S. Yoshida, Y. Okutsu, T. Nakamura, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第2回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2009)  
(エポカル つくば国際会議場)  
2009. 3.9-10
52. Plasmon-mediated light emission from metallophthalocyanine/Au(111) induced by STM  
T. Kurita, A. Okada, K. Kanazawa, N. Okawa, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第2回学際物質科学国際シンポジウム (ISIMS-2009)  
(エポカル つくば国際会議場)  
2009. 3.9-10
53. Fluctuation in band structures of pentacene/Au(111) investigated by scanning tunneling spectroscopy  
N. Takeuchi, Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第2回学際物質科学国際シンポジウム(ISIMS-2009)  
(エポカル つくば国際会議場)  
2009. 3.9-10
54. Carrier dynamics around localized gap states investigated by femtosecond time-resolved STM  
M. Yokota, Y. Terada, S. Yoshida, A.Okubo, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
第2回学際物質科学国際シンポジウム(ISIMS-2009)  
(エポカル つくば国際会議場)  
2009. 3.9-10

55. Nanoscale visualization of carrier dynamics in semiconductors by femtosecond time-resolved STM  
Y. Terada, S. Yoshida, M. Yokota, A. Okubo, O. Takeuchi, H. Shigekawa  
11th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure(ICESS-11)  
(奈良県新公会堂)  
2009. 10.6
56. STM/STS study on confined electronic states of glycine/Cu(111) supramolecular nanoporous structure  
K. Kanazawa, H. Huang, A. Taninaka, O. Takeuchi, H. Shigekawa  
11th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure(ICESS-11)  
(奈良県新公会堂)  
2009. 10.6
57. Local band structure fluctuation in pentacene thin film investigated by scanning tunneling microscopy/spectroscopy  
T. Noriaki, Y. Terada, S. Yoshida, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
2nd Tsukuba-Shinchi Bilateral Symposium on Advanced Materials Science and Technology (TSAMS2009) (エポカル つくば国際会議場)  
2009. 10.10-12
58. Conductance Measurement of Silicon-Molecule-Silicon Junction  
K. Ishii, S. Yoshida, T. Nakamura, O. Takeuchi, and, H. Shigekawa  
17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2009. 12.10-12
59. Carrier Dynamics in GaAs P-I-N Structures Investigated by Femtosecond Time-Resolved STM  
A. Okubo, Y. Terada, S. Yoshida, M. Yokota, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2009. 12.10-12
60. Characterization of local emission from organic EL device induced by STM light emission spectroscopy  
T. Kurita, N. Okawa, K. Kanazawa, A. Okada\*, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2009. 12.10-12
61. Band structure fluctuation in pentacene thin film investigated by scanning probe microscopy  
N.Takeuchi, Y.Terada, S.Yoshida, O.Takeuchi and H.Shigekawa  
17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17)  
(Atagawa Heights, Shizuoka)  
2009. 12.10-12
62. Probing carrier dynamics via gap states using time-resolved STM  
M. Yokota, Y. Terada, S. Yoshida, A.Okubo, O. Takeuchi, and H. Shigekawa  
17th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM17)  
(Atagawa Heights, Shizuoka) 2009. 12.10-12



(4)知財出願

①国内出願 (2 件)

1. “ポンププローブ測定装置及びそれを用いた走査プローブ顕微鏡装置”、  
発明者:重川秀実、武内修、  
出願機関:独立行政法人科学技術振興機構  
出願日:2006年11月29日  
出願番号:2006-322662
2. “ヘテロダイニートプローブ走査プローブ顕微鏡”、  
発明者:松山英治、重川秀実、根本承次郎、中村潤児、大井川治宏、  
武内修、保田諭  
出願機関:筑波大学  
出願日:2007年3月5日  
出願番号:2006-000007

②海外出願 (1 件)

1. “ポンププローブ測定装置及びそれを用いた走査プローブ顕微鏡装置”、  
発明者:重川秀実、武内修、  
出願機関:独立行政法人科学技術振興機構  
出願日:2007年11月28日  
出願番号:PCT/JP/072988

(5)受賞・報道等

① 受賞

1. 平成 17 年度:表面科学会講演奨励賞  
Cu(100)表面におけるグリシン分子の自己組織化  
金澤研
2. 平成 19 年度:表面科学会講演奨励賞  
動的分子間力分光法による結合ポテンシャルの分離測定  
谷中淳
3. 平成 19 年度:第一回学際物質科学国際シンポジウム 学生ポスター優秀賞  
STM-Induced Light Emission from an Organic-LED Structure  
大川直広

② マスコミ(新聞・TV等)報道など

1. Microscopic Basis for the Mechanism of Carrier Dynamics in an Operating p-n Junction  
Examined by using Light-Modulated Scanning Tunneling Spectroscopy  
Phys. Rev. Lett. 98, 026802 (2007)
  - (1) Focus に選ばれ掲載  
17 January 2007
  - (2) Materials Today に取り上げられて掲載  
vol.10, issue 3, page 10 (March 2007)

③ その他

1. SELECTED IN Virtual Journal of Ultrafast Science  
June 2006 Volume 5, Issue 6  
“Nonlinear Dependences in Pulse-Pair-Excited Scanning Tunneling Microscopy”  
Jpn. J. Appl. Phys., Vol.45, No.3B, 1926-1930(2006)  
O. Takeuchi, M. Aoyama, H. Kondo, Y. Terada,  
Atsushi Taninaka and Hidemi Shigekawa
2. SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
June 19, 2006, Volume 13, Issue 24  
“Single Molecular Anatomy of Solvophobic Effects in Host-Guest Interactions Based on  
Surface Tension Using Atomic Force Microscopy”  
S. Yasuda, I. Suzuki, K. Shinohara and H. Shigekawa  
Phys. Rev. Lett. 96, 228303 (2006)
3. SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
October 23, 2006, Volume 14, Issue 17  
“Dynamic-Force Spectroscopy Measurement with Precise Force Control Using  
Atomic-Force Microscopy Probe”  
O. Takeuchi, T. Miyakoshi, A. Taninaka, K. Tanaka, D. Cho, M. Fujita, S. Yasuda,  
S. P. Jarvis and H. Shigekawa  
Journal of Applied Physics 100, 074315(2006)
4. SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
November 6, 2006, Volume 14, Issue 19  
“Multiple stacking of self-assembled InAs quantum dots embedded by GaNAs strain  
compensating layers”  
R. Oshima, T. Hashimoto, H. Shigekawa and Y. Okada  
J. Appl. Phys. 100, 083110 (2006)
5. SELECTED IN Focus.  
17 January 2007  
SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
January 22, 2007, Volume 15, Issue 3  
“Microscopic Basis for the Mechanism of Carrier Dynamics in an Operating p-n Junction  
Examined by using Light-Modulated Scanning Tunneling Spectroscopy”  
S. Yoshida, Y. Kanitani, R. Oshima, Y. Okada, O. Takeuchi and H. Shigekawa  
Phys. Rev. Lett. 98, 026802 (2007)
6. SELECTED IN Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology  
March 24, 2008 Volume 17, Issue 12  
“Probing nanoscale potential modulation by defect-induced gap states on  
GaAs(110) with light-modulated scanning tunneling spectroscopy”

Applied Physics Letters 92, 102105 (2008)

S. Yoshida, Y. Kanitani, O. Takeuchi and H. Shigekawa

## (6)成果展開事例

### ①実用化に向けての展開

#### <公開可能なもの>

- セミナーや、民間企業に対する技術移転・共同利用支援関係のイベント等で、研究者・技術者に対し本研究で開発した光励起時間分解 STM 法について紹介・指導を行った。
- 民間企業において、本研究で開発した光励起時間分解 STM 法について紹介・指導を行った。

### ② 社会還元的な展開活動

- 本研究成果について、学会での基礎講座、シンポジウム等において、研究者や学生に先端技術の紹介・指導を行った。

## § 6 研究期間中の主な活動（ワークショップ・シンポジウム等）

年月日	名称	場所	参加人数	概要
毎年 4月、12月	主な チームミーティング	筑波大学	15-20人	各グループの現状・成果紹介と意見交換
2005.9. -2006.8	フランス CNRS との共同 研究	筑波大学	フランスより 1名滞在	原子欠陥制御・電子状態解析・他

## § 7 結び

研究計画の目的は達成し、さらに、他項目でも記載した新しい手法『パルスピッキング法による遅延時間変調』技術の開拓により、予想を超えて、非常に充実した計測システムが完成した。当初、職人芸として測定を行ってきた精密実験を、新しく加わった学生でも短期間の訓練により、非常にスムーズに行うことが可能になった。こうした改善は、将来的な技術の普及において大きな効果を持つものと思われる。また、本課題は、超短パルス光など量子光学の最先端技術を STM に組み合わせることで、ナノスケールのダイナミクスを解析することを念頭において進められたが、得られた技術は、マクロな量子光学の計測においても役立つものであり、幅広い応用が期待される結果となった。

CREST の特徴は、多くの優秀な人材を雇用できることで、これにより著しい研究の進展が可能になるとともに、異なる分野間の人材交流を通じ、研究員自身も大きく成長することを身近に体験した。特に、先端技術の開発には多くの基本的な知識と技術を必要とすることから、5年間での進歩には目を見張るものがある。さらに、優秀な研究員の下でともに仕事を進めることで、学生も研究者としての自覚を持ち、通常では得ることがかなわない貴重な経験を持つことが可能となった。

最後に、統括をはじめ、アドバイザー、事務職員の皆さんには、本当に親身になって、ご指導、ご支援を頂きました。本プロジェクトの採択、また、その後頂いた数々のお力添えに対し、心よりお礼を申し上げます。また、今後も、日本の科学技術を支え進展させる基盤として、CREST が重要な役割を担うことは間違いなく、プロジェクトの一つに選ばれたことを誇りに思います。どうも有り難うございました。

