

ヘテロダイン走査型トンネル分光 (HSTS) の原理と応用

松山英治

筑波大学数理物質科学等技術室

〒305-8572 茨城県つくば市天王台 1-1-1

概要

ヘテロダイン走査トンネル分光 (HSTS) 計測法という新しい局所精密計測手法を開発した^[1]。HSTS 計測法は、2つの入力交流信号 f_1 と f_2 のヘテロダインミキシングを STM の探針と試料の間の接合部分で生じさせ、 f_1 と f_2 の差周波数を持つ信号 f_3 を生起する (図 1)。 f_3 は 1 eV ~ 1 neV の広いエネルギー領域に、任意の強度で発生できる。生起した f_3 信号は任意周波数に移動でき、 f_3 信号により測定対象へ共鳴吸収を起こさせ信号を高感度に検出される 1peV の分解能と原子レベルの空間分解能を有する。

キーワード : ヘテロダイン検出、走査トンネル顕微鏡、THz 分光、精密分光

1. はじめに

物質の原子 1 つ 1 つの性質を調べる研究は、今日まで盛んに取り組みられてきました。その中で、テラヘルツ波やノイズレベルの微弱信号を精密に調べる技術の開発は難しく、未だに成し遂げられていない課題でした。本研究は、微弱信号を高感度に検出する原理としてアルマ宇宙望遠鏡 (アタカマ大型ミリ波サブミリ波干渉計) の検出技術に着目し、これを原子 1 つ 1 つが識別可能な走査型トンネル顕微鏡に導入して新しい精密分光計測手法を開発しました。この計測法により、物質を構成する原子の性質を高速かつ精密に計測することが可能となり、新しい物質の性質の発見につながることを期待されます。

2. HSTSの原理

本研究は、微弱信号を高感度に検出する方法として、アルマ宇宙望遠鏡の検出技術に着目しました。アルマ望遠鏡では、宇宙遠方からの極微弱なテラヘルツ波信号を窒化ニオブチタン/絶縁体/窒化ニオブチタン接合部へ導波し、ヘテロダイン検出という信号検出方法により計測しています^[3,4]。接合部の形やサイズは、原子 1 つ 1 つを観る走査型トンネル顕微鏡 (STM) の探針と試料間との接合部分に良く似ています。そこで、この検出法を STM に導入し、極めて高い信号検出感度を備え、エネルギー分解能が高く、計測対象に擾乱を与えずに原子レベルの空間分解能を実現する新しい局所精密分光計測法として、ヘテロダイン走査トンネル分光 (heterodyne scanning tunneling spectroscopy, HSTS) 計測法を開発しました。

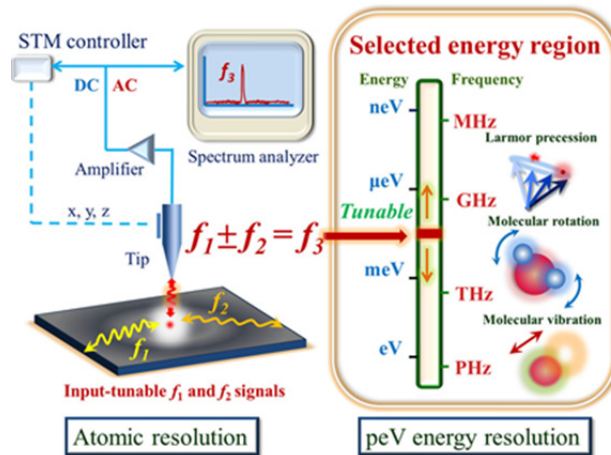


図 1. ヘテロダイン走査トンネル分光 (HSTS) 計測法の模式図

HSTS 計測法では、2つの入力交流信号 f_1 と f_2 のヘテロダインミキシングを STM の探針と試料の間の接合部分で生じさせ、 f_1 と f_2 の周波数の差を持つ信号 f_3 を生起します (図 1)。 f_3 は 1 電子ボルト (1 eV) から 1 ナノ電子ボルト (1 neV = 0.000000001 eV) までの幅広いエネルギー領域、すなわち 1 メガヘルツ (1 MHz = 1,000,000 Hz) から 1 ペタヘルツ (1 PHz = 1,000,000,000,000,000 Hz) までの幅広い周波数領域に、任意の強度で発生させることができます。また、発生させた f_3 信号は、ラジオをチューニングするように動かすことができます。この f_3 信号を用いて測定対象と共鳴吸収やヘテロダインミキシングを起こさせて信号を高感度に検出することで、1 ピコ電子ボルト (1peV = 1peV = 1peV = 1peV = 1peV = 0.000000000001 eV) のエネルギー分解能と原子レベルの空間分解能で精密分光を行います。例えば、固体表面上のスピンのラーモア歳差運動と呼ばれる運動や分子の回転や振動モードを、非破壊かつ無擾乱で高感度に計測することができます。開発した HSTS 計測法の精密性を示すために、装置上の様々な不安定因子を排除できる kHz (キロヘルツ) 帯域のモデル入力信号 (f_1 と f_2) を用いて、走査トンネル顕微鏡の探針と試料 (高配向性熱分解グラファイト) との間の接合部分において、ヘテロダインミキシングを起こすことができることを示しました (図 2)。この際、ヘテロダインミキシングで発生させた f_3 信号の周波数と強度を精密にコントロールできます (図 3)。次に f_1 と f_2 を接近させて相互変調ひずみと呼ばれるひずみを発生させ、高い周波

数の信号団を低い周波数の信号団に変換するビートダウンが可能であることを示しました (図 4)。さらに、ギガヘルツ (1GHz = 1,000,000,000 Hz) 領域に存在した信号をヘテロダインミキシングにより可聴周波数に変換できることを示しました (図 5)。最後に、HSTS 計測法の応用例として、通常はロックイン検波法という方法による走査トンネル分光計測を、HSTS 計測法によって高速かつ精密に行えることを示しました。ロックイン法(従来法)の結果を図 6 の右軸に、HSTS 計測法の結果を図 6 の左軸に示しています。HSTS 計測法では各サンプルバイアス (サンプルにかける電圧) 条件において検出されるトンネル電流の交流成分を高速フーリエ変換 (FFT) によって周波数分解させた後、入力信号である f_1 と f_2 の周波数およびヘテロダインミキシングで発生させた f_3 信号の強度をプロットしました。図 6 に示したスペクトルの形状より、HSTS 計測法によって従来法と全く同じシグナルプロファイルが得られることがわかりました。ここでは 3 つの周波数成分のみをプロットしてありますが、HSTS 計測法は従来法とは異なり、観測される信号の全周波数成分を一度に、高感度に検出します。そのため、図 4 のような多数の周波数のシグナル成分が存在している場合でも、各々の強度変化を瞬時にとらえることができます。このように、HSTS 計測法が極めて優れた計測法であることが確認されました [1]。

3. 実験結果

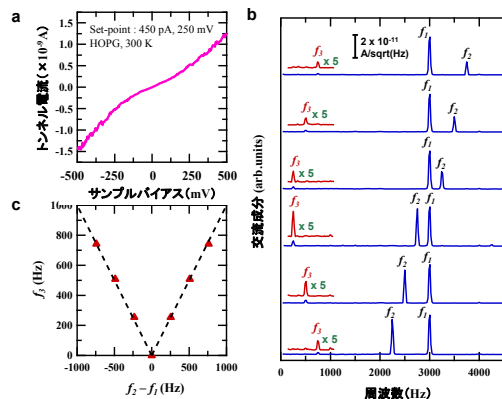


図 2. ヘテロダインミキシング信号 f_3 の生起と検出
a, 高配向性熱分解グラファイト表面にかけるサンプルバイアスを変えた際のトンネル電流の変化：電流と電圧が非線形の関係になっておりヘテロダインミキシングを起こすことが可能であることを示しています。b, f_1 と f_2 をサンプルに入力したときのトンネル電流の高速フーリエ変換結果：入力信号の f_1 と f_2 に加えて f_3 で示す信号が新たに生成していることを示しています。c, f_3 の周波数に対する f_2 と f_1 の周波数の差 ($f_2 - f_1$) : f_3 の周波数が f_2 と f_1 の周波数の差に対応しており f_3 がヘテロダインミキシングによって生起した信号であることを示しています。

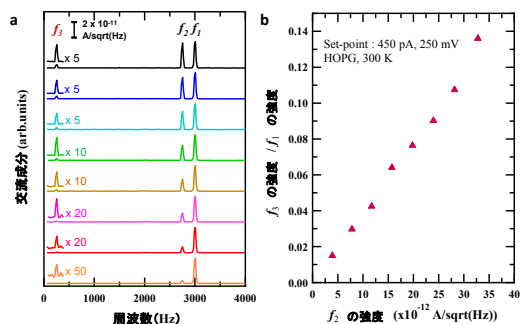


図 3. ヘテロダインミキシング信号 f_3 強度のコントロール

a, 入力 f_1 (3007.8 Hz)信号の強度を固定し、入力 f_2 (2753.9 Hz)信号の強度を変化させたときのトンネル電流[注 3]の高速フーリエ変換結果。b, (f_3 強度/ f_1 強度)と f_3 (253.9 Hz)信号強度の関係： f_3 強度をコントロールできることを示しています。

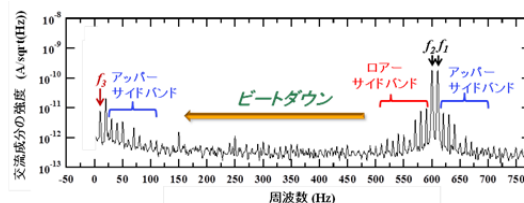


図 4. 相互作用ひずみ

2 つの入力交流信号 f_1 と f_2 の周波数を接近させたとき ($f_1 = 610.0$ and $f_2 = 600.0$ Hz) のトンネル電流の高速フーリエ変換結果：相互作用ひずみが出現し、アップパーサイドバンドの信号団が低い周波数帯域にビートダウンしていることを示しています。

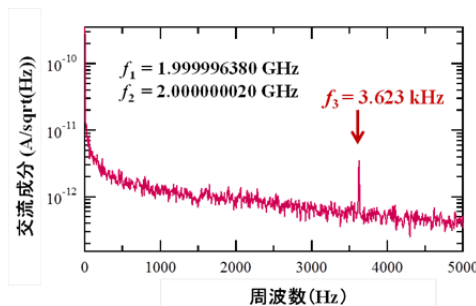


図 5. ギガヘルツ信号のヘテロダインミキシング

2 つの入力交流信号 f_1 と f_2 の周波数をギガヘルツ帯域にした場合 ($f_1 = 1.999996380$ GHz と $f_2 = 2.000000020$ Hz) のトンネル電流の高速フーリエ変換結果： f_1 と f_2 差周波 (3.623 kHz) を持つ f_3 が生起してトンネル電流成分として検出できたことを示しています。

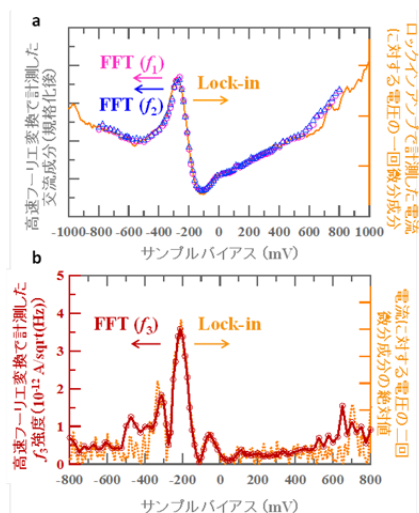


図 6. HSTS の応用例として行った走査トンネル分光計測

従来法の結果を右軸に、HSTS 計測法の結果を左軸に示しています。a, ロックインアンプで計測した、電流に対する電圧の一回微分成分 (従来法) と HSTS で計測した f_1 と f_2 の強度が同じサンプルバイアス依存性を示すことを示しています。b, 電流に対する電圧の二回微分成分 (従来法) と HSTS で計測した f_3 の強度が同じサンプルバイアス依存性を示すことを示しています。

4. これからの展望

本研究で開発した HSTS 計測法により、物質の原子 1 つ 1 つを識別しながら、それぞれの原子の性質を高速かつ精密に計測することが可能となりました。今後、物理化学、物質科学、生命科学などの様々な分野で HSTS 計測法が用いられ、これまで計測できなかった物質の様々な重要な微細構造情報にアクセスすることで新しい物質の性質の発見につながるものと期待されます。

謝辞

本報告書作成にあたり Scientific Reports 4 (2014) 6711、Principles and Application of Heterodyne Scanning Tunnelling Spectroscopy 共著者である、近藤剛弘講師、大川治宏講師・郭東輝研究員・根本承次郎名誉教授・中村潤児教授、皆様のご支援、ご鞭撻に感謝致します。

本研究は、日本学術振興会科研費奨励研究「光ビートプローブ STM による局所プラズモン共鳴励起と量子電磁波の観測」(研究代表者: 松山 英治、研

究期間: 平成 21 年度)、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) / 固体高分子形燃料電池実用化推進技術開発/ 基盤技術開発/ カーボンアロイ触媒「カーボンアロイ触媒の最適活性点形成に関する研究」(研究代表者: 近藤 剛弘、研究期間: 平成 22-26 年度) の一部として実施されました。

参考文献

- [1] E. Matsuyama et al., Scientific Reports 4 (2014) 6711
- [2] Alatsky, A. V., Fransson, J., Mozyrsky, D. & Manassen, Y., Phys. Rev. B 73, 184429 (2006).
- [3] Onouchi. Nat Photon. 1, 97–105 (2007).
- [4] <http://www.almaobservatory.org/>

用語解説

注 1) テラヘルツ波: 周波数が $0.1 \sim 100$ THz (テラヘルツ) にある電磁波。光と電波の中間の周波数であり、双方の特性を併せ持つ。

注 2) 走査型トンネル顕微鏡 (STM)、トンネル電流: 先端を尖がらせた金属針 (探針) が、試料表面をなぞるように走査して、その表面の形状を原子レベルの空間分解能で観測する顕微鏡。探針と試料間に流れるトンネル電流と呼ばれる電流 (0.000000001 m 程度と非常に近い距離に物質を近づけた際に流れる電流) を検出し、その電流値を探針と試料間の距離に変換させ画像化する。トンネル電流は試料の電子状態に依存するので、表面構造だけでなく電子状態も原子レベルの空間分解能で調べることができる。

注 3) 高速フーリエ変換 (FFT): 信号を周波数成分の和として表すとき各周波数成分の強度を求める計算方法 (フーリエ変換) の一つ。デジタル信号の周波数解析を行う場合には離散フーリエ変換と呼ばれる方法が用いられるが、これを高速に計算する手法が高速フーリエ変換である。

注 4) ヘテロダイン検出、ヘテロダインミキシング: ラジオなど電波工学の信号処理で用いられる高感度な信号検出方法。非線形系において 2 つの振動波形を合成または掛け合わせる (ヘテロダインミキシング・相互変調) で新たな周波数が生成する原理を用いる信号検出。信号の変調および復調、興味のある情報を扱やすい周波数領域に移す用途に使われている。

注 5) 共鳴吸収
ある物質系が振動する外場のエネルギーを吸収して励起される現象。振動の周波数を変化させると、ある値の近傍で強いエネルギー吸収が起こる。

Principles and Application of Heterodyne Scanning Tunnelling Spectroscopy

Eiji matsuyama

Technical Service Office for Pure and Applied Sciences, Graduate School of Pure and Applied Sciences,
University of Tsukuba, 1-1-1 Tennodai, Tsukuba, Ibaraki, 305-8573 Japan

Here we show a new type of atomic-scale spectroscopy, heterodyne scanning tunnelling spectroscopy (HSTS), which is based on the innovative application of the nonlinear heterodyne-mixing detection at the metal-insulator- metal heterojunction of STM tip – vacuum – sample ^[1]. We successfully detect a heterodyne beat signal $f_3 (=|f_2 - f_1|)$ via tunnelling current by superimposing two different AC signals, f_1 and f_2 , onto the DC tunnelling current at a highly oriented pyrolytic graphite (HOPG) surface. We then obtain spectra of the localized electronic states of HOPG by using f_3 . HSTS can be performed with a high resolution and over a wide energy range, including the terahertz range (Fig. 1).

Keywords: Heterodyne detection, STM, Terahertz spectroscopy, Fine spectroscopy