

研究課題名 低次元電荷・光ダイナミクスのナノ空間制御  
所属研究機関 東北大学 金属材料研究所  
研究者氏名 長尾 忠昭

## 研究計画の概要

### 研究の趣旨・目的

本研究では原子層レベルの極薄領域におけるプラズマ振動に注目し、マクロスケールおよびナノスケールの超高真空「その場」光学測定を通して明らかにする。これまでの高波数分解 EELS による研究に加え、光を用いた分光研究を展開し、構造制御された低次元材料からの電子エネルギー損失分光スペクトルと光学反射率測定を対応付けて研究することで、原子レベルの極薄領域での低次元電荷・光ダイナミクスを包括的に理解する、新しい物性研究を立ち上げる。これまでのエピタクシー制御と電子物性研究を、本課題の研究手法と効果的に組み合わせることでナノサイエンス・固体物性における新たな研究テーマの開拓を目指す。

- 1) エピタクシャルナノ薄膜にステップや欠陥などのナノ構造を制御性良く構築するための基礎的研究を進める。また、研究者が独自に開発した高波数分解 ELS-LEED 複合装置を用いて、作成した超薄膜試料のナノフォロジエーを評価した上で、波数-プラズモンエネルギーの関係(プラズモン分散)を測定し、ナノ構造とプラズモン構造との対応関係を詳細に研究してゆく。
- 2) スポットプロファイル分析低速電子回折装置(SPA-LEED)を装備した超高真空MBE装置に反射測定用分光光度計を装備し、原子配列構造、周期的ナノ構造を規定しながら電荷の集団応答の変化の様子を巨視的光学伝導度測定を通して調べる。また、それと組み合わせる従来4端子法との比較も行い、巨視的電子物性とプラズモン物性との対応関係も調べる。

研究全体の目標として、将来的に低次元物質に存在するシートプラズモンを利用した新規な物性計測技術や光機能材料、電気-光変換デバイスなどへの応用展開を目指しながら基礎的知見の蓄積を行ってゆく。

### 研究計画の概要

#### 1. 低次元ナノ構造の構築のため基礎的研究。

低温-高温走査プローブ顕微鏡装置を導入し、これを現有のMBE超高真空槽と結合することで、半導体(シリコンなど)表面上に金属ナノ薄膜の成長させ、最適な成長条件や測定試料の探索を行う。

#### 2. エピタクシャルナノ薄膜のナノ構造と電荷ダイナミクスの巨視的測定。

上記装置に分光光度計を装備し、位置分解したトンネル発光のスペクトル解析を行うことで、ナノ構造を介してプラズモンと輻射場が結合する様子を調べる。また、現有のスポットプロファイル分析低速電子回折装置(SPA-LEED)を装備した超高真空MBE装置に反射測定用分光光度計を装備し、原子配列構造、(ステップなどの)ナノ周期構造を規定しながら電荷の集団応答の変化の様子を巨視的光学伝導度測定を通して調べる。同時に、研究者が独自に開発した高波数分解 EELS-LEED 複合装置を用いて、超薄膜試料のナノフォロジエーとプラズモン分散を測定し、ナノ構造とプラズモン構造との対応関係を詳細に研究し、上記光学測定の結果との対応関係を調べる。

以上の実験からナノ構造変調されたシートプラズモンを用いた新材料創製のための基礎的指針を得、この知見を低次元構造を持つ金属、有機半導体超薄膜など広範な材料に適用し、原子レベルのスケールで新たな機能を持つナノフォトニクスマテリアル実現のための基礎的指針を得たい。

研究計画の詳細報告

(単位：百万円)

研究項目	所要経費				
	13年度	14年度	15年度	16、17年度	合計
(1) ナノ変調構造をもつエピタキシャル原子層の作成と巨視的な光学応答特性の研究。 ・真空装置設置 ・分光光度計の設置 ・クライオスタット製作 ・設備維持費	6.8(百万円) (6.8)	9.9(百万円) (6.7) (3.2)	3.0(百万円)		19.7
極低温走査プローブ顕微鏡の設置 ・蒸着源設置 ・設備維持費	15.7(百万円)	2.9(百万円) (2.9)	2.4(百万円)		21.0
(3) 位置分解光伝導の測定  ・金属単原子層の測定					
(4) シートプラズモンと光学伝導度・電気伝導度との対応関係  ・反射高速電子回折設置 ・クヌーセンサー設置 ・設備維持費 ・賃金			7.4(百万円)		7.4
(5) 取りまとめ ・学会参加費等					
所要経費(合計) (間接経費を含む)	22.5	12.8	12.8		

## .研究成果の概要

### 研究成果の概要

本研究課題の重要な一翼を担う高波数分解EELS-LEED装置の整備・改良を行い、シリコン表面上の金属超薄膜の低次元プラズモン測定を系統的に行った。

シリコン表面電子バンド中のシートプラズモンは低次元電子ダイナミクス研究のパラダイムシステムとしては単純で理想的な最適システムである。しかし、応用展開を考えた際、超高真空環境外では存在し得ない系であるため、より現実的な研究対象として、大気中で破壊されないAgおよびAuの金属ナノ薄膜を選択し、electronic growth法による超平坦膜の作成後にEELS測定を行った。まず、低温蒸着法によりAg超薄膜の厚さを17層から1層まで変化させながら次元性を擬2次元から2次元へと変化させEELS測定を行った。プラズモンの分散測定はナノ薄膜のグレインサイズやステップ密度を上記装置のLEEDモードを用いて正確に評価しながら行った。本研究で新たに観測した2.0eV以下の低エネルギー側の強く分散する分枝は、薄膜の2次元性を反映した擬2次元的なモードであり、かつSi-Ag界面に誘起電荷が集中した「界面プラズモン」でもあることを明らかにした。局所応答理論による解析において、バルクのAgとSiの誘電関数と厚さのみを代入することで観測した分散関係が非常によく再現できることが判った。このことは、例えば、Agとシリコンを用いたフォトニックデバイス構築の際、バルクAgの誘電定数とデバイスのサイズ効果を考慮することで、そのパフォーマンスがかなりの精度で事前評価できることを意味している。このような知見はSiテクノロジーにおいて金属超薄膜のプラズモンを利用したオプトエレクトロニクスデバイス創製に関連して有益な知見となりうると考えている。さらに、Ag以上にシリコンテクノロジーとの融合性の高いAuの平坦ナノ薄膜もSi上に製作し、同様の界面モードを観測し、同様の解釈が可能であることを見出した。

Si(557)面やステップ表面などのシリコン表面上に金を蒸着させると高伝電子密度の擬1次元電子系を構築できることが報告されているが、所属研究室の既存の走査トンネル顕微鏡を用いて試料作製技術をマスターした。上記シリコン高指数面、Au、Agを蒸着させ擬1次元金属に対するプラズモン(ワイヤープラズモン)測定を試み、試験的データを得た。また、ステップ表面にテラスサイズで決まる有限幅をもつ変調2次元電子系を構築することに成功し、シートプラズモンの閉じ込め効果を調べる上での有望な測定対象を幾つか見出した。また、有機低次元伝導性固体のエピタクシャル成長にもトライし、例えばSi(111)-7x7表面上に成長したBi超薄膜をバッファ層とした、結晶性の高いアセン系有機半導体超薄膜の成長にも成功した。

### 波及効果、発展方向、改善点等

学術的には低次元物質をベースとした原子層スケールの光・電子ダイナミクスの新しい研究分野が拓けると考えている。例えば、高温超電導体や強相関エレクトロニクス材料においても低次元伝導構造をベースにしたものは多く、シートプラズモンを基軸として光・電気特性の理解が進めば、固体物理、材料科学における本研究のインパクトは多大なものとなる筈である。また、次元性の低さと使用可能なエネルギー帯の広さからも、マイクロオプトエレクトロニクス産業におけるダウンサイジングとスペクトル資源の確保のニーズに合致し、具体的な材料や応用展開が成功すれば、計り知れない波及効果が期待できる。

科学・産業上ナノ領域における物性の制御とその計測の需要は益々高まっており本研究もその流れにお

いて大きな可能性と波及効果を期待できる。特に、本研究のように低次元系の、基底状態ではなく励起状態、電荷・光ダイナミクスに着目し、ナノ空間制御を行いそこから新しい物理現象を抽出しようとするアプローチは殆どなく、新しい観点からの研究展開、新奇な現象の発見などが期待でき、新しい研究領域の拓ける可能性が高いと考えている。

## .研究成果公表等の状況

### (1) 研究発表件数

	原著論文による発表	左記以外の誌上発表	口頭発表	合計
国内	1件	3件	15件	19件
国際	16件	0件	15件	31件
合計	17件	3件	30件	50件

### (2) 特許等出願件数

合計 1件 (うち国内1件、国外0件)

### (3) 受賞等

0件 (うち国内0件、国外0件)

### (4) 主な原著論文による発表の内訳

\* 発表者氏名 ; 「発表題目」,文献名,巻(号),頁, (掲載年)の順

国内誌 (国内英文誌を含む)

1. Takeharu Sekiguchi, Tadaaki Nagao and Shuji Hasegawa, "Transformation dynamics in Ca-induced reconstructions on Si(111) surface ", e-J. Surf. Sci. Nanotech. Vol. 1, p.26-32 (2003).

国外誌

1. S. Yaginuma, T. Nagao, J.T. Sadowski, A. Pucci, Y. Fujikawa, and T. Sakurai, "Surface pre-melting and surface flattening of Bi nanofilm on Si(111)-7x7 ", Surface Science, in press.
2. T. Inaoka, T. Nagao, S. Hasegawa, T. Hildebrandt, and M. Henzler, "Two-dimensional plasmon in a metallic monolayer on a semiconductor surface ", Exchange-correlation effects ", Physical Review B 66 (24), art. no. 245320 (2002).
3. V.U. Nazarov, S. Nishigaki, and T. Nagao, "Nonlinear mechanism of plasmon damping in electron gas ", Physical Review B 66 (9), art. no. 092301 (2002).
4. Y. Fujikawa, K. Akiyama, T. Nagao, T. Sakurai, M.G. Lagally, T. Hashimoto, Y. Morikawa, and K. Terakura, "Origin of the stability of Ge(105) on Si: A new structure model and surface strain relaxation ", Physical Review Letters, 88, art. no. 176101 (2002)
5. Y. Fujikawa, J.T. Sadowski, K.F. Kelly, K.S. Nakayama, T. Nagao, and T. Sakurai, "Fluorine etching on the Si(111)-7x7 surfaces using fluorinated fullerene ", Surf Sci. 521 (1-2), 43-48 (2002).
6. X. Tong, S. Ohuchi, N. Sato, T. Tanikawa, T. Nagao, I. Matsuda, Y. Aoyagi, and S. Hasegawa, "Electronic structure of Ag-induced root 3x root 3 and root 21x root 21 superstructures on the Si(111) surface studied by angle-resolved photoemission spectroscopy and scanning tunneling microscopy ", Physical Review B 64 (20): art. no. 205316 (2001).
7. F.X. Shi, I. Shiraki, T. Nagao, and S. Hasegawa, "Electromigration and phase transformation of Ag on a Cu-precovered Si(111) surface, " Surface Science 493 (1-3), 331-337 (2001).
8. T. Sekiguchi, F. Shimokoshi, T. Nagao, and S. Hasegawa, " A series of Ca -induced reconstructions on Si(111) surface, " Surface Science 493 (1-3), 148-156 (2001).
9. T. Tanikawa, I. Matsuda, T. Nagao, and S. Hasegawa, "Growth mode and electrical conductance of Ag atomic layers on Si(001) surface, " Surface Science 493 (1-3), 389-398 (2001).
10. S. V. Ryjkov, T. Nagao, V.G. Lifshits, and S. Hasegawa, "Surface roughness and electrical resistance on Si(100)2 x 3-Na surface, " Surface Science 493 (1-3), 619-625 (2001).
11. I. Shiraki, F. Tanabe, R. Hobaru, T. Nagao, and S. Hasegawa, "Independently driven four-tip probes for conductivity measurements in ultrahigh vacuum, " Surface Science 493 (1-3), 633-643 (2001).
12. T. Nagao, T. Hildebrandt, M. Henzler, and S. Hasegawa, "Two-dimensional plasmon in a surface-state band ", Surface Science 493/1-3, 680-686 (2001).
13. S. V. Ryjkov, T. Nagao, V. Lifshits, and S. Hasegawa, "Phase transition and stability of Si(111)-8x '2 '-In surface phase at low temperatures, " Surface Science 488, 15-22 (2001).
14. T. Nagao, T. Hildebrandt, M. Henzler, and S. Hasegawa, "Dispersion and damping of a two-dimensional plasmon in a surface-state band ", Physical Review Letters 86, 5747-5750 (2001).

(5)主要雑誌への研究成果発表

Journal	Impact Factor	合計
Physical Review Letters	7.32	3
Physical Review B	3.33	6
Surface Science	2.14	8
Applied Physics Letters	4.21	2

