The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	極低温環境下の非接触原子間力顕微鏡を用いた原子スケールでの資料観察と操作
Author(s)	岡本, 憲二
Citation	大阪大学低温センターだより. 2003, 121, p. 18-21
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/5864
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

研究ノート

極低温環境下の非接触原子間力顕微鏡を用いた原子スケールでの試料観察と操作

低温センター　岡　本　憲　二（内線　7763）
E-mail : okamoto @ele.eng.osaka-u.ac.jp

1．はじめに

試料の表面形状を得たい場合、現在のところもっとも高分解能を達成している手法は、走査型プローブ顕微鏡（scanning probe microscopy: SPM）である。SPMでは、コンピュータ制御された探針が試料表面を「なぞる」ことにより、表面形状を得ることができる。SPMの中でもっとも広く用いられている物は、試料とプローブの間に流れる電流を検出する、走査型トンネル顕微鏡（scanning tunneling microscopy: STM）がすでに原子分解能を達成している。しかし、電流を検出するSTMには、試料が伝導体に限られるという制限がある。一方、探針が試料に接触した際に探針にかかる「力」を検出する、原子間力顕微鏡（atomic force microscopy: AFM）では、試料に対する制限がない。近年、カンチレバーをその共振周波数で励振する方式等が考案されてAFMの力の検出感度は向上し、共振周波数の変化を検出するFM検出方式を用いて原子スケールで非破壊な測定が実現されている。このような方式をとるAFMは非接触原子間力顕微鏡（noncontact AFM: NC-AFM）と呼ばれ、すでに原子分解能を達成している。1995年に相次いで半導体表面[1, 2]および金属結晶表面[3]の観察結果が報告されて以来、イオン結晶表面等も含めてさまざまな試料について原子像が得られてきた。

このように原子分解能計測が確立されると、極低温環境下での試料観察への展開が期待される。たとえば、常温では原子は熱エネルギーによって激しく振動しており、表面構造自体の変形を伴う場合もある。このような変形は非常に高速であるため、STMやNC-AFMでは追従することができず、正確に構造を観察することができない。極低温環境下では、原子構造の熱揺らぎを抑えることができ、原子構造を正確に観察することが可能となる。本ノートでは、その例としてSi（111）面上に銀を蒸着した表面の構造を観察した例を紹介する。また、常温では欠陥や表面吸着原子が、激しく移動・拡散する場合がある。これらは、たとえば近年注目されている単原子・分子操作などをおこなう場合には、致命的な問題となる。極低温環境下においてこれらの移動・拡散を抑えることにより、安定して原子・分子操作をおこなうことが可能となる。本ノートでは、極低温環境下におけるSi（111）表面での単原子操作について紹介する。

さらに極低温環境下におけるNC-AFM測定においては、熱ゆらぎに起因するカンチレバーの周波数ノイズが低減されるため高精度の測定が可能となることや、熱ドリフトの減少により探針－試料間の相対位置が安定することで高精度の測定が可能となるなど、計測上有効な要素も多い。

2．Si（111）$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$－Ag 表面構造の極低温環境下での観察

清浄なSi（111）7×7再構成表面を300～600℃に加熱し、0.1～1 MLの銀を蒸着したとき、Si（111）$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$－Ag構造が形成されることが知られている[4-6]。近年までこの表面上での構造は、単位胞に大きさの等しい2つの三角形（トライマー：3量体）が含まれるHoneycomb Chained Trimer（HCT）モデル（図1 a.）で説明できると考えられてきた。実際、常温で得られたSTM像においても、それぞれのトライマーが大きさも形も輝度もほぼ等しい輝点として観察されることが報告されている（図2 a.[7]）。

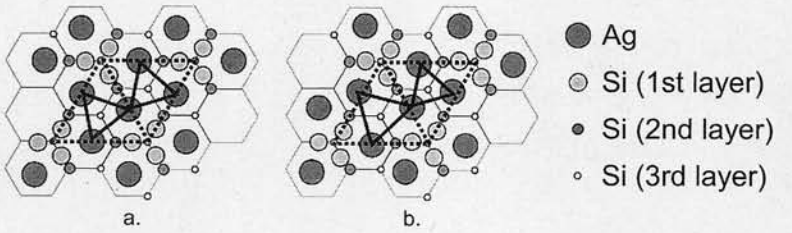

図1　Si（111）$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$－Ag構造として考えられるモデル。a.は吸着Ag原子がつくる3角形（トライマー）が単位胞内に2つ存在し、大きさの等しいHoneycomb Chained Trimer（HCT）モデル。b.はそれぞれの大きさに差のあるInequivalent Trimer（IET）モデル。図b.とは大小関係が逆転した状態もエネルギー的には等価であり、同様に存在し得る。

しかし、最近の理論的研究によって、単位胞内の2つのトライマーの大きさに差があるInequivalent Trimer（IET）モデル（図1 b.）がよりエネルギーの低い構造であることが示された[8、9]。どちらのトライマーが大きい場合もエネルギー的には等価であるため、常温では2つの構造の間で高速にフリップ・フロップ運動をしていることが予想され、そのため常温では2つの平均的な構造としてHCT構造が観察されたと考えることができる。しかし、極低温環境下では、熱エネルギーによる構造変化が抑えられるため、IET構造が観察されるはずである。実際、極低温環境下でのSTM観察では2つのトライマーに大きさや輝度の差が生じることが確認された（図2 b.[7]）。しかしSTMでは原子そのものではなく電子密度分布が画像化されるため、トライマーとして密集した個々の原子を分解して画像化することはできていない。それに対してNC-AFMは表面原子を直接画像化することができ、常温でHCT構造の原子像を得ることにも成功している（図2 c.[10、11]）。したがって、極低温環境下でNC-AFM観察をおこなうことにより、実際にIET構造が形成されているか確認できることを期待できる。

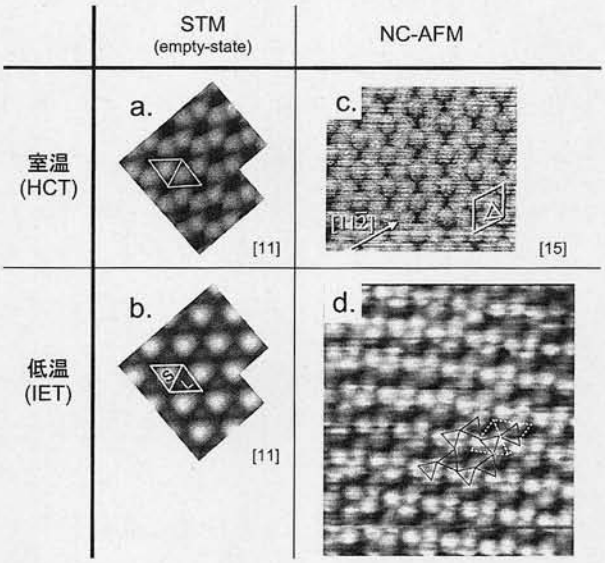

図2　常温および低温環境下における、STMおよびNC-AFMによるSi（111）$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$－Ag表面の観察結果。常温では対称な、低温では非対称なトライマーが観察される。d.が今回観察をおこなった結果であり、IET構造を確認することができる。

実験結果を図2 d.に示す。実験はわれわれが開発した、トップパス型クライオスタットを装備したNC-AFM装置でおこない、液体Heを用いた冷却により試料を6 Kに保った状態で

観察をおこなった。図中に点線で示した領域が、Si（111）$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$－Ag 構造の単位胞である。単位胞内の三角が２つのトライマーを示しており、それぞれ３つの輝点を頂点としていることが分かる。これらの輝点は、トライマーを形成する Ag 吸着原子であると思われる。このように、極低温環境下で NC-AFM 観察をおこなうことによってはじめて、Si（111）$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$－Ag が IET 構造をとることが直接的に確認された。

３．Si（111）７×７表面における垂直方向の単原子操作

STM および NC-AFM による試料表面の原子スケール観察が実現され、次の展開の１つとして単原子・分子操作の実現が期待されている。すでに STM を用いて原子操作がおこなわれた例は報告されている。しかし、STM は電気的な手法であり、試料に導電性が必要とされるという制限から逃れることはできない。もっと汎用的な応用を考えた場合、試料を選ばない NC-AFM による原子操作技術を確立することには大きな意義がある。われわれは、NC-AFM を用いた単原子レベルので垂直方向の原子操作－すなわち、試料表面から原子１つを引き抜く－に成功したので、紹介する。

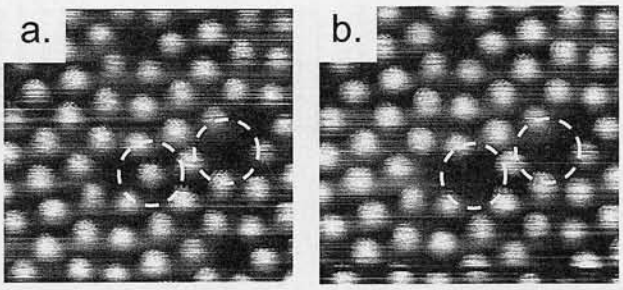

図３　Si（111）７×７表面での原子操作の実験結果。a.から b.の間に引き抜き操作をおこなった。左側の丸の位置で確かに表面原子の１つが失われていることが、マーカー（右側の丸で示した欠陥）を基準として確認できる。

実験には Ag/Si 表面観察と同様の、トップバス型クライオスタットを装備した NC-AFM 装置を用いた。試料には Si（111）７×７再構成表面を用い、試料を約９Ｋに冷却して実験をおこなった。実験結果を図３に示す。一度試料表面を走査した（図３ a.）あと、目標とする原子（図中の左の丸）の位置に探針を移動し、探針－試料間距離を制御する圧電体にパルス的に電圧を印加し、探針を試料に急激に接触－退避させた。その結果を図３ b.に示すが、確かに表面から原子が１つ失われていることが、マーカーとなる欠陥（図中の右の丸）との比較から確認することができる。さらに、図４に連続的に原子引き抜きをおこなった結果を示す。点線で示す単位胞内で、点で示した原子が次の画像で失われていることが、左上の吸着物等をマーカーとすることで確認することができる。また、図中＋印で示した原子は本来原子が存在しない位置に吸着されており、引き抜きの際に加えられた力で準安定な位置に移動したものと思われる。

４．おわりに

極低温環境下における NC-AFM 観察においては、試料表面、探針先端ともに構造が非常に安定しているなど、計測をおこなう上でのメリットが非常に大きい。本ノートで紹介したように、常温では見えなかったものが見えるようになり、できなかったことができるようになる。また、常温で NC-AFM を用いておこなわれている静電気力測定や磁気力測定も、極低温環境下でおこなえば新たな情報を得られることが期待でき、非常に興味深い。世界的にも極低温環境下での NC-AFM 観察に関する報告は増えており、今後ますます発展することが期待される分野である。

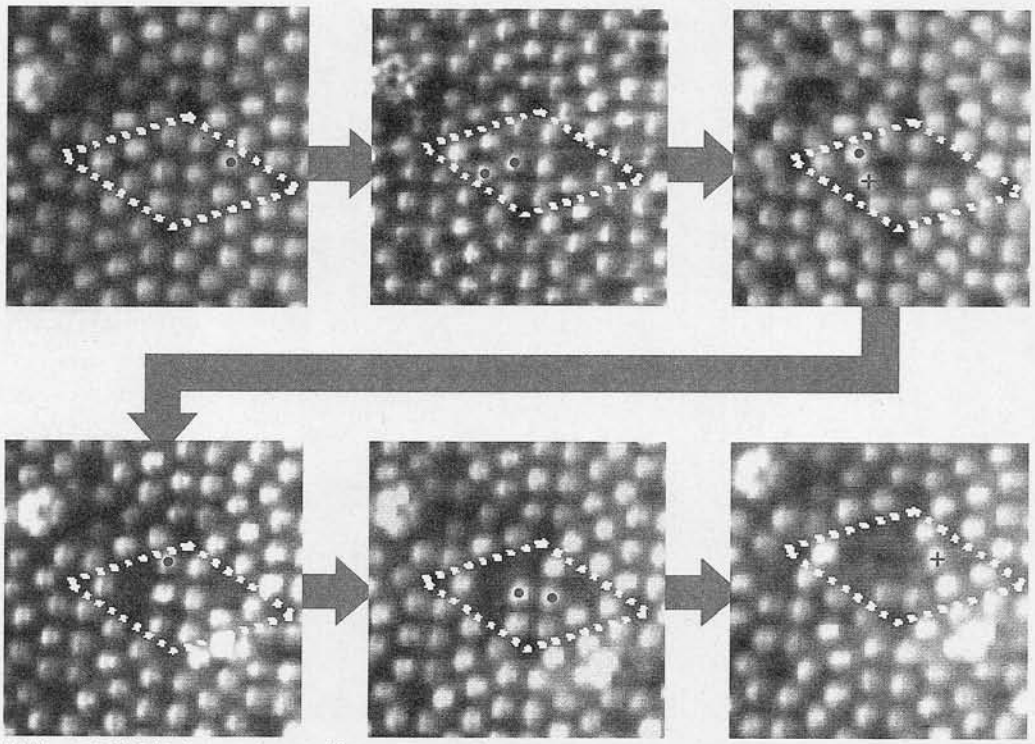

図4　連続的に原子操作をおこなった様子。図中に点で示した原子が、次の画像では失われていることが分かる。＋で示した原子は本来原子が存在しない位置に移動している。

謝　辞

本研究は、電子工学専攻 森田 清三 教授および応用物理学専攻 菅原 康弘 教授の指導、協力により、元博士前期課程学生 魚住 豊市 氏、佐野 義尚 氏との共同研究としておこなわれた。心から感謝します。

参考文献

[1] F.-J. Giessibl: Science **267**, 68 (1995).

[2] S. Kitamura and M. Iwatsuki: Jpn. J. Appl. Phys. **34**, L145 (1995).

[3] Y. Sugawara, M. Ohta、 H. Ueyama、 and S. Morita: Science **270**, 1646 (1995).

[4] Y. Goto and S. Ino: Surf. Sci. **17**, 2097 (1978).

[5] G. Lelay: Surf. Sci. **132**, 169 (1983).

[6] K. J. Wan, X. F. Lin, and J. Nogami: Phys. Rev. **B 47**, 13700 (1993).

[7] S. Hasegawa、 N. Sato、 I. Shiraki, C. L. Petersen, P. Bogglid, T. M. Hansen, T. Nagao, and F. Grey: Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 3815 (2000).

[8] H. Aizawa, M. Tukada, N. Sato, and S. Hasegawa: Surf. Sci. **429**, L509 (1993).

[9] N. Sasaki, S. Watanabe, and H. Aizawa: Surf. Sci. **493**, 188 (2001).

[10] T. Minobe, T. Uchihashi, T. Tukamoto, S. Orisaka, Y. Sugawara, and S. Morita: Appl. Surf. Sci. **140**, 298 (1999).

[11] K. Yokoyama, T. Ochi, Y. Sugawara, and S. Morita: Phys. Rev. Lett. **83**, 5023 (1999).