

論文内容の要旨

論文題目 第一原理計算による Si(100) 表面の非接触原子間力顕微鏡像

氏名 小泉 悟

原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscopy; AFM) は、1986 年に Binnig らによって開発された。走査トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy; STM) とは異なり、AFM は探針先端と試料表面との間に働く原子間の力を検出するため、STM では観察できない絶縁性の試料においても、その表面の構造を高分解能に測定できる装置として期待された。

しかし、当初開発された接触方式の AFM では、真の原子分解能の証明となる単原子観察は達成されなかった。そこで、さまざまな改良や工夫が試みられ、ようやく 1995 年になって、Albrecht らにより提案された非接触 AFM を用いて、Giessibl が Si(111) 7×7 再構成表面の単原子観察に初めて成功した。それ以降、非接触 AFM で単原子の観察に成功したという報告が相次いだ。これらの結果より、現在では非接触 AFM が表面や表面上のナノ構造を原子尺度で観察するための優れた方法であると考えられている。また、今後も物質科学や生物科学など様々な分野において、一層の発展が期待されている。だが、実験法そのものは普及しているが、原理、

特に見ている情報量の本質、原子尺度分解能の機構などは必ずしもよく理解されていない。このように、理論的には未解明な部分が多いのは、非接触 AFM では、表面だけを考慮して探針の存在を無視するという STM で非常に有効な近似を行なうわけにはいかず、探針と表面の間の相互作用の情報が必要になるからである。

最近、非接触 AFM により、Si(100) 表面に関して興味深い実験結果が得られている。一つは室温での測定結果である。温度揺らぎによって $c(4\times 2)$ 構造が平均化されて、 $p(2\times 1)$ 対称構造が見えているのであるが、実験結果からダイマーの長さを見積もると、理論から予想される値よりも 20% 以上長くなる。もう一つは、低温での表面構造の変化である。室温から温度を下げていくと、温度揺らぎが抑制されて、 $c(4\times 2)$ 構造が見えるようになる。これは STM での測定結果と同じである。しかし、さらに温度を下げていくと非接触 AFM と STM では見える像が異なってくるという報告がある。

このように Si(100) 再構成表面はよく知られている表面でありながら、まだ完全に理解されているわけではない。さらには、量子細線などのナノデバイスを作成する場合の基板としての利用も期待されており、Si(100) 再構成表面それ自体も興味のない対象である。

そこで、本論文では、顕微鏡で見る対象として Si(100) 再構成表面、顕微鏡として硅素製の探針というどちらも構造の良く知られたものを選んだ。硅素製探針の模型として SiH_3 をとり、探針と Si(100)- $p(2\times 2)$ 再構成表面の間に働く相互作用を表面全体に渡って高さを変えて第一原理計算により求め、非接触 AFM の画像化の機構に関して知見を得ることを目標とした。

第一原理計算の概要は次の通りである。密度汎関数法に基づいて系の全エネルギーを最小化することにより構造最適化を行ない、探針・表面間の相互作用を求めた。ここでの近似は、局所密度近似と擬ポテンシャル近似の二つであり、局所密度近似では Perdew と Zunger がパラメータ化した Ceperley-Alder 型のものを、擬ポテンシャル近似では Troullier と Martins が提案した方法で構成された分離型擬ポテンシャルを用いた。全エネルギーの最小化は共役勾配 (CG) 法を用いて行なった。

主要な結果は以下の通りである。非接触 AFM は「非接触」と呼ばれているものの表面の構造を全く変化させないというわけではない。とくに Si(100) 再構成表面のダイマーの傾きのように、比較的まわりの環境とは独立して変化できる自由度があれば、探針の影響で表面の構造が複雑に変化する可能性がある。今回計算した Si(100)p(2×2) 表面では、探針の水平位置の違いにより、表面は次の三つのような異なる反応を示すことが分かった。

1. 表面は連続的に変形する。そのため、探針に掛かる力も連続的に変化する。
2. 探針を表面に近づけていくと、表面が不連続的に変形する。探針を表面から離していくときには、不連続的な変形は起こらない。そのため、探針に掛かる力は、探針を表面に近づけていくときには不連続的に変化するところがあるが、探針を表面から離していくときには連続的に変化する (図 1)。
3. 探針を表面に近づけていくときにも探針を表面から離していくときにも、表面は不連続的な変形を起こす。そのため、探針に掛かる力は、探針を表面に近づけていくときにも探針を表面から離していくときにも、不連続的に変化するところがある。不連続的な変化が起こるときの探針の高さは、探針を近づけていったときと探針を離していったときで異なっている。

以上より、低温では最接近時の探針・表面間の距離が少し違うだけで、非接触 AFM 像が大きく変化する可能性を指摘した。また、2 は、非接触 AFM が表面の観察にだけでなく、表面の原子構造を力学的に制御することにも利用できることを示唆していると考えられ、その機構を応用したものをいくつか挙げた。また、3 は力曲線が履歴を持つため、散逸の原因となることが考えられる。現在、非接触 AFM で散逸を測定できるのではないかと指摘されている。そこで、今回の計算結果から、もしそのような「散逸顕微鏡」が実現した場合に得られる Si(100) 表面の像を予測した (図 2)。

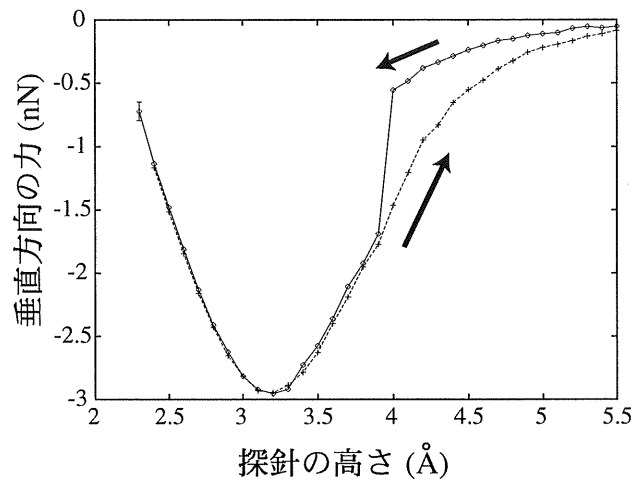


図 1: 2 に対応する力曲線。

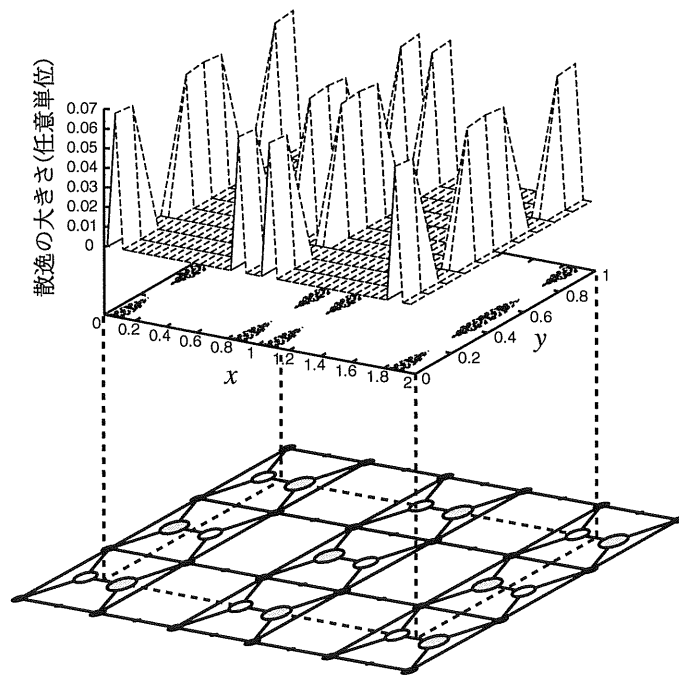


図 2: 「散逸顕微鏡」により得られると考えられる Si(100) 表面の像。