

## Exploring Dark Energy in the Universe

Yasushi Suto, Masahiro Takada and Hiroaki Aihara

abstract: Dark energy in the universe has emerged as one of the most embarrassing and fundamental unsolved problems in physical science. The name itself was coined by Michael Turner at University of Chicago, who indeed admits that “Our main achievement in understanding dark energy is to give it a name.” Similarly other famous physicists expressed their own frustrations in various ways, including “Right now, not only for cosmology but

for elementary particle theory this is the bone in the throat” (Steven Weinberg, The Nobel Prize in Physics 1979), “Would be number one on my list of things to figure out” (Edward Witten, The Fields Medal 1990), and “Maybe the most fundamentally mysterious thing in basic science” (Frank Wilczek, The Nobel Prize in Physics 2004). In this article, we describe why cosmologists tend to believe in dark energy, and then discuss future prospects to unveil the nature of the most mysterious component in the universe.



## 単原子ステップを通過する表面自由電子

松田 巖  
保原 麗  
長谷川修司

〈東京大学物性研究所付属軌道放射物性研究施設 277-8581 柏市柏の葉 5-1-5 e-mail: imatsuda@issp.u-tokyo.ac.jp〉

〈東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1 e-mail: rei@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp〉

〈東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1 e-mail: shuji@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp〉

固体表面原子一層内を通過する電子輸送は、新しい固体物理研究の対象でありナノテクノロジーにも重要なテーマである。しかし現実の表面には必ず欠陥として原子ステップが存在して伝導が妨げられるので、ここでの電気伝導機構の理解が不可欠である。本解説では走査トンネル分光によるステップ端周辺での電子定在波の観察と Landauer 公式に基づく解析から単原子ステップを横切るときのコンダクタンスを測定した実験を紹介する。また我々が独自に開発した2種類の表面敏感な電気伝導測定法（マイクロ4端子プローブ法および独立駆動型4探針プローブ法）で電気抵抗の直接測定も行った。これらの3つの独立の方法からほぼ一致する結果が得られ、ステップを通過する電子輸送のメカニズムが明らかになった。

### 1. はじめに：固体表面上単原子ステップ

半導体基板上で繰り返し広げられてきた回路素子の微細化技術は着実な進歩を遂げ、そのスケールがナノメートルに達した現在では“ナノテクノロジー”と呼ばれて新たな展開をみせている。この技術発展も最終的には半導体基板上の原子第一層まで到達することが期待される。物質が原子厚まで薄くなったときの様子は、古くから“表面科学”として研究が行われてきた。結晶表面では表面および吸着原子が自己組織化して単原子層、原子鎖、ナノドットなどを形成し、様々な低次元量子物性を発現する。<sup>1-7)</sup> これら表面上の構造体内の電子の電場応答は大変興味深い固体物理の研究テーマであり、さらに現代エレクトロニクスの究極の回路素子としての可能性を秘めている。

本稿では上記の低次元構造のうち、半導体基板上に形成した長周期構造を持つ単原子金属層（表面超構造）を取り扱う。固体表面に関する説明は、日本物理学会誌の過去の「解説」<sup>8)</sup>に譲るとして、ここでは表面とバルクの関係について簡単に触れる。結晶表面では、真空側に対する並進対称性が破れるのでバルクとは異なる原子構造と電子構造を持ち、さらに原子・分子吸着によっても新しい構造を形成する。例えばバルクのSi結晶構造はダイヤモンド構造であ

り、その(111)面の原子構造は図1(a)のようにになっている。図中の平行四辺形は表面の単位胞で、通常この1辺を単位として表面超構造の名称が付けられる。図1(a)の構造はあくまで理想的であり、実際にSi(111)結晶表面を超高真空中で用意すると、表面は再構成して $2\times 1$ や $7\times 7$ の長周期構造を持つ。これらの表面に1原子層分の銀を室温蒸着し、

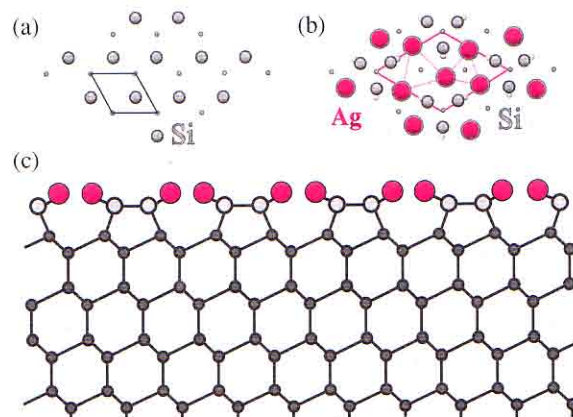


図1 (a) Si(111)理想表面の原子構造モデル。手前のSi原子は大きめに描かれており、平行四辺形は単位胞である。(b) Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag表面の原子構造モデル(IETモデル)。赤丸がAg原子で、灰色の丸がSi原子に対応している。(c) その断面図。

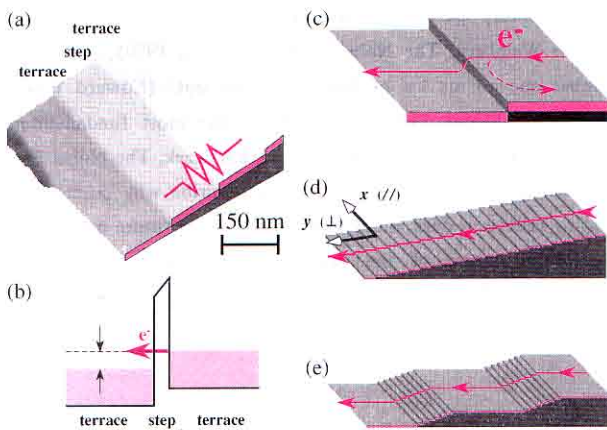


図2 (a) Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag 表面の STM 像 (室温). ステップは [10 $\bar{1}$ ] 結晶軸方向と平行である. 単原子ステップの電気抵抗の模式図も図中に入れている. また断面図には Ag 単原子層の領域を赤く染めている. (b) テラスのフェルミ準位の電子がステップを横切って隣のテラスに輸送される様子を表したエネルギーダイアグラム. 図中, 横軸は位置で縦軸はエネルギーを表し, ステップのところに高いエネルギー障壁がある. 赤い領域に電子が詰まっており, 矢印で示した正(負)電圧が左(右)側にかけられると右から左へ電子が移動する. (c) 単原子ステップでの表面電子の輸送(赤線)と散乱の様子. 反射電子を点線で示す. (d) ステップ表面(微斜面)の様子. ここでは  $x$  と  $y$  方向をそれぞれステップ平行 ( $//$ ) とステップ垂直 ( $\perp$ ) としている. (e) ステップバンチング領域を含む表面の様子.

その後 520~600°C で試料を加熱するとさらに再構成して  $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$  周期になる.<sup>4,8)</sup> 図 1(b) はその Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag 表面の原子構造モデルで, 図中の単位胞の一边は図 1(a) のものの  $\sqrt{3}$  倍である. 図 1(b) は, 通称 “Inequivalent Triangle (IET)” モデルと呼ばれ,<sup>4)</sup> 特徴は単位胞内に 3 つの銀原子があり, それらが大小 2 つの三角形を形成している. 図 1(c) はこの原子構造の断面図で, 最外層のみが Ag と Si から成るのに対して, それ以下の層では Si だけのダイヤモンド構造である. 後に示すように, 基板が半導体なのに対してこの表面層は金属である. 本稿ではこの金属的な表面第一層を電子がどのように輸送(表面電子輸送)していくかを考える.

さて, 図 2(a) はこの半導体表面上の金属単原子層 [Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag] の走査トンネル顕微鏡 (scanning tunneling microscopy; STM) 像である. 現実の表面では図のように線欠陥である単原子ステップが必ず存在することが特徴で, これは 2 つのテラスを区切る原子の段差である.<sup>8)</sup> ステップはこれまで表面科学の中心的な研究対象で, 触媒反応や表面相転移などの動的現象において重要な役割を果たすことが分かってきた.<sup>9,10)</sup> また表面上のステップ分布の人工制御も現在では可能となり, ナノ構造の形成や選択的結晶成長などのテンプレートとしての工学応用が研究されている.<sup>11)</sup> 表面電子輸送の観点からすればステップは伝導電子の散乱体であり, しかも表面電流を必ず妨げる “抵抗” である [図 2(a)]. しかも, ステップに対する電子の通過距離は原子レベルであるので, その伝導は Landauer の式に従うことが期待される [図 2(b)].

本稿では, このステップを横切って通過するときのコンダクタンス値 (電気伝導度) を 3 つの独立の方法で測定し

た実験と, その電子輸送機構を解説する. 第 1 の方法は図 2(c) のように電子がステップで散乱される様子を STM と走査トンネル分光 (scanning tunneling spectroscopy; STS) で観察して単原子ステップ 1 つのコンダクタンスを Landauer の式を用いて求めた. これは, 2 次元導体での Landauer の式を適用した新しい事例である. 第 2 と第 3 の方法ではステップ分布を制御した表面を用意し, その表面コンダクタンスを直接測定した. つまり第 2 の方法では, ステップが等間隔に並んだステップ表面 (微斜面) [図 2(d)] の面内コンダクタンスの異方性から, 第 3 の方法ではステップが密集した領域 (ステップバンチング領域) とステップのない領域 [図 2(e)] のコンダクタンスの差から, それぞれステップ 1 本辺りのコンダクタンスを決めた. いずれの方法も同じコンダクタンス値を与えた. 本稿ではさらにステップの電子輸送機構も議論する. 表面コンダクタンス測定には, マイクロ 4 端子法という我々が開発してきた独自の方法を利用しており, 本稿ではこの手法も紹介する.

## 2. Landauer の公式と単原子ステップ近傍の走査トンネル分光観察

一般に電子が散乱体に入射すると一部は反射され, 残りは透過する [図 2(c)]. このときの電子の透過率  $T$  はコンダクタンスと比例しており, その両者の関係を示したのが Landauer の式である. この式は伝導体の次元性によって異なり, 1 次元, 2 次元, 3 次元の伝導電子が 0 次元, 1 次元, 2 次元のポテンシャル障壁を通過する場合, 一般的にそれぞれ<sup>12-14)</sup>

$$\sigma_{1D} = \frac{2e^2}{h} \cdot T \quad (\Omega^{-1}) \quad (1)$$

$$\sigma_{2D} = \frac{2e^2}{h} \cdot \frac{k_F}{\pi} \cdot T \quad (\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}) \quad (2)$$

$$\sigma_{3D} = \frac{2e^2}{h} \cdot \frac{k_F^2}{4\pi} \cdot T \quad (\Omega^{-1} \text{ m}^{-2}) \quad (3)$$

と表すことができる. ここで,  $e$  は電気素量,  $h$  はプランク定数,  $k_F$  はフェルミ波数である. ただし, これらの式では透過率  $T$  はエネルギーには依存しないと近似している.  $\sigma_{1D}$  はナノワイヤーや点接触のコンダクタンス量子化で使用される有名な公式である. 特に, 物質に依存しない普遍物理定数だけで表されているのが特徴である. それに対して, 2 次元および 3 次元の式には物質に依存するフェルミ波数 ( $k_F$ ) が入っているため, 量子化単位が普遍定数にならない.  $\sigma_{3D}$  はトンネル素子の解析にこれまで使われてきたが,  $\sigma_{2D}$  の式を適用できる系がこれまであまり知られていなかった. 本研究で対象とするのは単原子ステップ (1 次元ポテンシャル障壁) により隔てられた 2 次元金属原子層 (2 次元伝導体) であり, まさしくこの  $\sigma_{2D}$  の式が当てはまる系であると言える.

単原子ステップを通過する電子輸送現象を調べるにあたり, 我々は試料表面として, 先に説明した Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -

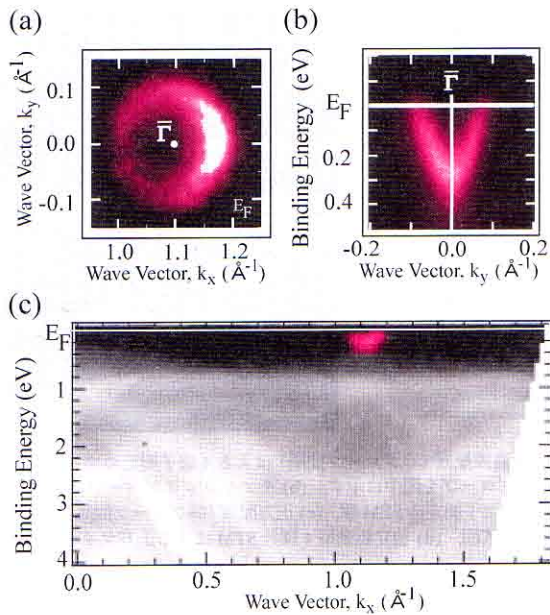


図3 角度分解光電子分光で測定したSi(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面のバンド分散図。図中の明るい部分にバンド分散曲線が対応する。(a) フェルミ面。(b) フェルミ単位近傍のバンド分散図( $k_y$ 方向)。(c)  $k_x$ 軸方向のバンド構造。フェルミ単位を横切る金属的なバンドを赤く着色している。図(b, c)はBinding Energy (結合エネルギー)とwave vector (波数,  $k_x, k_y$ )の関係を表す。

Ag表面を使用した(図1)。下地が半導体であるのに対して、この単原子層は自由電子的な金属バンドを持つ。自由電子はエネルギー( $E$ )と波数( $k$ )の間に $E = \hbar^2 k^2 / 2m^*$ の関係があるので、2次元自由電子の場合はバンド分散は $k_x$ と $k_y$ の軸に対して有効質量 $m^*$ で特徴づけられる放物線で、フェルミ面はフェルミ波数 $k_F$ が半径となる完全な円を成す。図3は我々が角度分解光電子分光法(Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy; ARPES)によって得た表面とバルクのバンド分散図である。図中、明るい部分(光電子強度の強いところ)にバンドが存在し、それらの分散曲線をたどることができる。図3(c)は広い波数領域のバンド構造である。このうち、重要なのはフェルミ準位( $E_F$ )の近傍で、全体的にバンドの存在しない領域(黒い領域)が広がり、これはSi下地基板の半導体バンドギャップに対応する。しかし波数( $k_x$ )が $1.1 \text{ \AA}^{-1}$ の辺りでは $E_F$ を横切る(金属)バンドが存在し、これはSi(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面由来のものである。このように、たとえ半導体基板を用いても表面層によってはギャップ内に金属的なバンドを有するものができるので、下地バルク内の電子状態と切り離されると言える。さて、バンドが $E_F$ を横切る波数(フェルミ波数,  $k_F$ )では、 $E_F$ での光電子強度が大きくなる。そこでその強度を波数( $k_x, k_y$ )に対してプロットすると、フェルミ面がマッピングされる。図3(a)のようにSi(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面の金属バンドのフェルミ面は完全な円を成し、 $k_F$ はおよそ $0.1 \text{ \AA}^{-1}$ となっている。<sup>2,15)</sup>一方バンド分散は図3(b)のように放物線的である。このようにSi(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面の電子系は単純な自由電子であることが確認でき、波動関数も2次元平面波として取り扱うことができる。

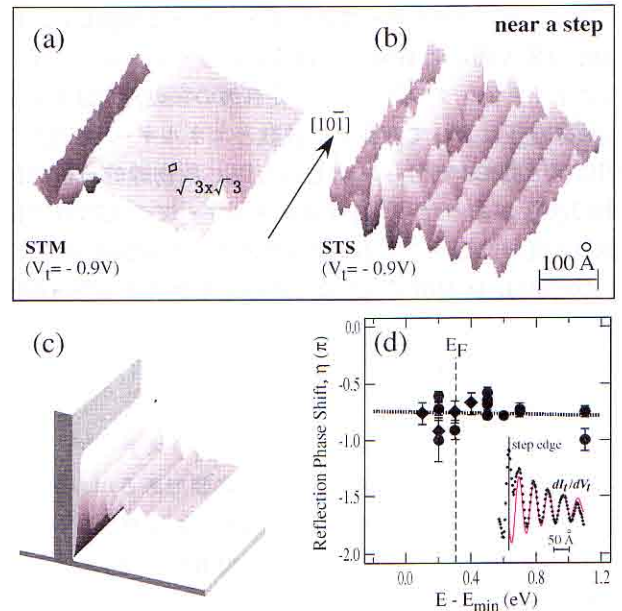


図4 (a) 単原子ステップ付近のトポグラフ(STM)像。像は65 Kで観察された。像中に $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ の単位胞も示す。図中の $V_t$ はトンネル顕微鏡観察において、接地したサンプルに対してSTM探針にかけた電圧である。(b) 同じ場所の局所状態密度(STS)像で、位相検波法を用いて観察された。この方法では探針電圧に交流を重畳し、その結果発生したトンネル電流( $I_t$ )の交流成分を取り出すことで、 $dI_t/dV_t$ すなわちSTIS信号を抽出する。<sup>23)</sup>(c) 1次元ポテンシャル障壁付近に形成された定在波の模式図。(d) ステップでの散乱による反射位相シフト( $\eta$ )のエネルギー依存性。エネルギーは表面状態バンドの底( $E_{\text{min}}$ )を基準としている。フェルミ準位( $E_F$ )のエネルギー位置を図中に示す。黒丸は本研究の結果で、菱形は過去のSTM観察<sup>18)</sup>から得られた値。点線は最小2乗法によるフィッティングの結果。挿入図は図1(b)のSTIS像のラインプロファイルで、STM像から決められたステップ端(step edge)の位置を直線で示す。赤線は式(4)によるフィッティングの結果。

さて、この2次元平面波が1次元のポテンシャル障壁であるステップに衝突すると入射波と反射波の間で干渉を起こし、障壁近傍で局所状態密度(Local Density of States; LDOS)が距離に対して振動するいわゆる“定在波(standing wave)”が形成される[図4(c)].<sup>15-19)</sup>表面研究の魅力は、その分析技術の発展により電子および原子の位置(空間分布)、運動量(波数)、そしてエネルギーを直接、高分解能で測定・観察できることである。実際図4(a)と(b)はこの表面<sup>2,15)</sup>におけるステップ近傍の(a)トポグラフ像(STM像)と(b)局所状態密度像(STS像)であり、図4(c)で期待したようなステップ近傍での定在波の形成を直接確認することができる。このSTIS像を以下に示す方法で解析すると、ステップにおける表面電子波の反射位相シフト $\eta$ が求められ、さらに波動関数の透過率 $T$ を決定できる。<sup>16,17,20-22)</sup>

図4(b)のように、LDOSはステップ端に垂直な方向( $y$ 軸方向)に沿って減衰しながら振動し、この様子は以下の式で表される。

$$\text{LDOS}(y) \propto \exp(-y/L) \cdot \cos(2ky - \eta) \quad (4)$$

ここで $L$ は減衰長、 $k$ は波数ベクトル、 $\eta$ は反射位相シフトであり、ステップ端は $y=0$ に位置する。そこで様々な探針電圧のSTIS像のラインプロファイルを取り、式(4)の関数

でフィッティングを行って各パラメーターを抽出した。図4(d)の挿入図に図4(b)から得られたラインプロファイルとフィッティング曲線を示す。定在波の振動周期はトンネル探針電圧によって変化し、波数とエネルギー(電圧)の間にはARPESで得られたものと同じ放物線の分散関係[図3(b)]があった。<sup>15)</sup> 様々なエネルギーでのLDOSの振動から反射位相シフト( $\eta$ )とエネルギーの関係を求めた。その結果は、図4(d)に示すように測定したエネルギー範囲においてほとんど一定であった。 $E_F$ はバンド底から約0.3 eVのところであり、<sup>15)</sup> その付近の反射位相シフトは約 $-(0.8 \pm 0.05)\pi$ である。

さて、最終的にLandauerの公式(2)よりステップのコンダクタンスを求めるには透過率 $T$ が必要であるが、反射位相シフトからその値を求めるのはステップにポテンシャル障壁を仮定しなければならない。そのポテンシャルモデルとして最も簡単なのが $\delta$ 関数型ポテンシャルモデルであり、これまでも金属表面のステップにおける電子波の透過・反射の議論に使用されてきた。<sup>13,20)</sup> このモデルを用いると、透過率 $T$ は $E_F$ 単位での反射位相シフト $\eta$ を使って、

$$T = 1 - \frac{1}{1 + \tan^2(\eta + \pi)} \quad (5)$$

と直接表すことができる。<sup>13,20)</sup> このモデルでは(i)表面電子がバルク基板内に散乱されない、<sup>20,21)</sup> (ii)ポテンシャル障壁幅が十分に薄い、<sup>13)</sup> という条件を満たすときに適用される。本研究で対象とする系は(i)表面状態がバルクバンドギャップ内にあるため電子は表面状態からバルク状態への散乱がほとんど起きず、そして(ii)ステップ端はほぼ原子レベルの幅しかないため、これらの条件を満たしている。この式(5)に実験で決定した $\eta$ を代入すると、 $T = 0.3 \pm 0.15$ となった。すなわちこのモデルにおいて、Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面層(表面状態)を流れる伝導電子の原子ステップでの透過率がだまかに30%と見積もられる。

以上で決定した $T$ と光電子分光から得られた $k_F$ の値( $\sim 0.1 \text{ \AA}^{-1}$ )<sup>15)</sup>を式(2)へ代入すると、単原子ステップのコンダクタンスは $\sigma_{\text{step}} = 9(\pm 4) \times 10^3 \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$ となった。この値の意味としては、1メートル平方の2次元完全導体中に単原子ステップが1本あり、そこを電子が横切るときのコンダクタンスを考えるとよい。この結果は後の電気伝導測定の結果と比較される。

### 3. 単原子ステップの電気伝導の直接測定

試料の電気伝導度(電気抵抗)を測定するにはふつう4端子法が用いられ、van der Pauw法やMontgomery法が知られている。<sup>24)</sup> これらは試料の端に電極を取り付けるので端子間隔はmm以上になり、測定電流が下地基板へ広がってしまい、表面一厚層のみを測定するのは困難である。そのためこれまでの表面電気伝導の研究では、絶縁体基板上の比較的厚い金属薄膜を対象とするか、あるいは下地基板の電気伝導度を解析の時点で大胆に差し引かなければなら

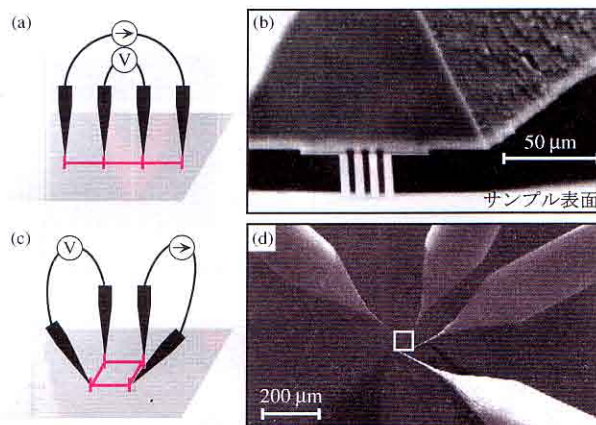


図5 (a)直線配置(等プローブ間隔)による4端子測定の様式図。電流および電極プローブを図中に示す。(b)モノリシックプローブによる(直線)マイクロ4端子測定用のSEM像。(c)正方配置(等プローブ間隔)による4端子測定の様式図。(d)独立駆動型4探針STMによる正方マイクロ4端子測定用のSEM像。

なかった。<sup>25,26)</sup> そこで我々は結晶表面上の単原子層を通過する電子輸送過程(表面状態の電気伝導度)の直接測定を行うためにマイクロ4端子法を開発してきた。<sup>27-29)</sup> この方法ではプローブ間隔を数 $\mu\text{m}$ にすることで測定電流分布を表面ごく近傍に抑え、電気伝導測定における表面感度を十分に上げることができる。このような端子をマクロな試料表面(mm~cm-サイズ)に設置した場合、試料は無限大の平面とみなすことができる。この場合Poisson方程式から解析解が得られ、測定される電気抵抗から系のコンダクタンスを直接計算することができる。4つの端子が直線上に等間隔で配置している場合[図5(a)], その関係式は以下の通りである。<sup>30)</sup>

$$V/I = \frac{1}{\pi} \frac{1}{\sqrt{\sigma_x \sigma_y}} \ln 2 \quad (6)$$

ここで $I$ は外側の2本のプローブ間を流れる電流であり、 $V$ は内側の2本のプローブ間で測定される電圧降下である。 $\sigma_x$ と $\sigma_y$ は表面を $x$ - $y$ 平面とみなした場合の $x$ および $y$ 方向のシート(Sheet)コンダクタンス( $\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$ )であり、これは先のステップ単位長さ当りのコンダクタンス $\sigma_{2D}$ ( $\Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$ )とは異なる量であることを注意しておく。なお、電気伝導度が等方的な表面では( $\sigma_x = \sigma_y = \sigma$ ),  $V/I = (\ln 2/\pi) \cdot 1/\sigma = C \cdot R$ となる。ここで $C$ は定数で、 $R$ はシート抵抗(Sheet Resistance)である。すなわち、ある系の測定抵抗 $V/I$ と電気抵抗の間には4端子法に起因する補正項がかかり、その値は系の次元性や均一性などに依存する。

このような直線配置でマイクロ4端子測定を行う際、我々は図5(b)のSEM写真に示すモノリシックプローブ(Monolithic probe)を用いる。プローブにはリソグラフィ技術によるSiのエッチング加工により先端を尖らせた4つのプローブが直線状に配列し、その間隔は数 $\mu\text{m}$ から数十 $\mu\text{m}$ まで選択できる。<sup>27)</sup> プローブ表面には良質な電気的コンタクトのためにAuおよびTiが蒸着され、またプローブ本体は $0.4 \sim 100 \text{ Nm}^{-1}$ のバネ定数を持っているため原子

間力顕微鏡 (AFM) のカンチレバーとほぼ同等な弾力性を持つ。現在このプローブはCapres社において販売されている。<sup>31)</sup> このプローブを表面垂直方向に動かして試料表面に接触させて表面の電気伝導度が計測できる単純さが利点である。最近我々は10 Kから室温まで温度を変えながら、このプローブによる電気伝導測定が行える装置を立ち上げ、<sup>27, 32)</sup> 表面1次元In鎖の金属-絶縁体転移(パイエルス転移)による電気伝導度の変化や表面での局在による伝導度変化の測定に成功した。<sup>33)</sup>

しかしながらこの直線配置による4端子測定では、 $x$ - $y$ 平面の電気伝導度に異方性があった場合( $\sigma_x \neq \sigma_y$ )、たとえ4端子プローブをサンプルに対して $90^\circ$ 回転しても測定抵抗値は変わらない。これは式(6)で $\sigma_x$ と $\sigma_y$ を交換しても、 $V/I$ は両者の相乗平均のみで与えられているからである。すなわち、この方法では、表面の異方(anisotropic)コンダクタンスは測ることができない。一方プローブが正方形に等間隔で配置している場合[図5(c)], Poisson方程式を解くと以下が与えられる。<sup>30, 34)</sup>

$$V/I = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{\sigma_x \sigma_y}} \ln \left( 1 + \frac{\sigma_y}{\sigma_x} \right) \quad (7)$$

ここで、 $I$ は隣接2本のプローブ間を流れる電流で、 $V$ は残りの2つのプローブ間の電圧降下である。この場合、異方コンダクタンスを持つ試料については、 $90^\circ$ 回転して測定すると(電圧-電流プローブ対の組み合わせを変えて式(7)の $\sigma_x$ と $\sigma_y$ を交換すると)、異なる測定抵抗値( $V/I$ )が得られることが分かる。すなわち、無限2次元シートの異方コンダクタンスを計測するには正方4端子測定が必要であり、また $\sigma_x$ と $\sigma_y$ は2つの異なる測定抵抗値から直接求めることができる。さらにPoisson方程式から、4本のプローブが作る正方形の回転角に対する抵抗値の解析解を求めることができ、

$$\frac{V}{I} = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\sqrt{\sigma_x \sigma_y}} \times \ln \sqrt{\frac{(\sigma_x/\sigma_y + 1)^2 - 4 \cos^2 \theta \sin^2 \theta (\sigma_x/\sigma_y - 1)^2}{(\sin^2 \theta + \sigma_x/\sigma_y \cos^2 \theta)^2}} \quad (8)$$

となる。<sup>34)</sup> 式(7)は式(8)に $\theta=90^\circ$ を代入すると得られる。すなわち図6のように正方形を回転させて4端子測定を行い、実験結果を式(8)でフィッティングすることにより高い精度で $\sigma_x$ と $\sigma_y$ を別に求めることができる。

このような正方配置およびその回転を伴うプローブ制御として、我々は独自に開発した独立駆動型4探針STM装置を用いた。<sup>28, 29)</sup> この装置では4本のプローブとして4本のSTM探針を利用する。STM探針は通常STM観察に使用するが、先端が原子レベルまで鋭いのでポイントプローブとしても適している。本装置ではSTM観察モードと電気伝導測定モードは切り換えて使用する。各STM探針は $x$ 、 $y$ 、 $z$ 方向にそれぞれ自在に駆動でき、その動作をSEM観察により制御する。図5(d)は4つのSTM探針の先端を正方形に配置したSEM像である。また図6にはプローブ先端

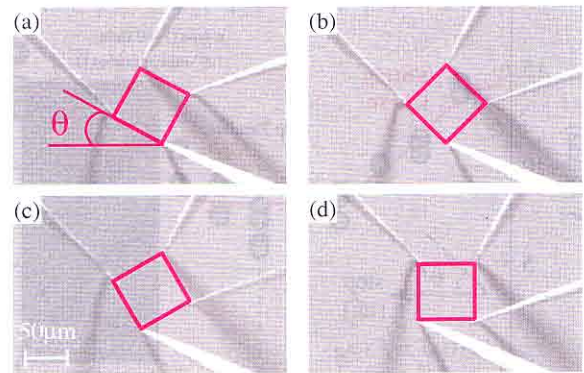


図6 回転正方マイクロ4端子測定用のSEM像。<sup>34)</sup> プローブ間隔(正方形の1辺)は $60 \mu\text{m}$ 。回転角は $\theta=(a) 30^\circ (b) 45^\circ (c) 60^\circ (d) 90^\circ$ 。

の正方形配置を回転させた様子を示す。<sup>34)</sup> 以上のように先のモノリシックプローブに比べてこのシステムは複雑であるが、直線、正方形など自由なプローブ配置を取ることができ、また表面上のナノ構造体を選択的に電気伝導測定ができる利点がある。最近我々はSi表面上の個々の金属シリサイドナノワイヤーの1次元電気抵抗や、InおよびAuの金属鎖列の異方電気伝導測定を報告してきた。<sup>6, 7, 34)</sup> 現在では温度可変型の独立駆動型4探針STM装置の開発を行っている。<sup>29)</sup>

マイクロ4端子プローブを用いると、高い表面感度でコンダクタンスを測定できるが、その絶対値には下地基板(バルク、空間電荷層)のコンダクタンス分も多かれ少なかれ含まれている。そのため、ステップに起因したコンダクタンスを抽出するために、ステップ分布の異方性や不均一性を利用する。ここではまず前者のケースとして、単原子ステップが規則正しく整列した微傾斜表面上のSi(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag構造[図2(d)]の回転正方マイクロ4端子測定<sup>34)</sup>を行った結果について説明する。実験では、Siウエハー基板として(111)表面垂直方向から $[\bar{1}\bar{1}2]$ 方向に $0.9^\circ$ 、 $1.8^\circ$ 傾いて切られた微斜面のものを用いた。<sup>35)</sup> 図7の挿入図(STM像)に示すように、ステップはすべて $[\bar{1}10]$ 軸方向に揃っており、ほぼ等間隔(10~20 nm)で均一に分布していた(図2(d)参照)。このようなナノスケールの構造体を実際に測定が行われるマイクロスケールから見ると、微傾斜表面は異方的な2次元伝導体とみなすことができる。なぜならステップ列に垂直方向には抵抗が高いと予想されるからである。

先に示したように、テラス上の $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag超構造のフェルミ面は完全な円であり、<sup>15)</sup> また表面の下にある表面空間電荷層のバルク状態バンドおよび結晶の内側のバルク状態バンドも等方的である。すなわち、電気伝導度の面内異方性が検出された場合、それはステップ列に起因し、ステップに垂直な方向の電気伝導度はその平行方向よりも低くなると考えられる。それゆえ、回転正方マイクロ4端子測定によって検出されるシートコンダクタンスの異方性から直接ステップの情報を得ることができ、さらにステップ1

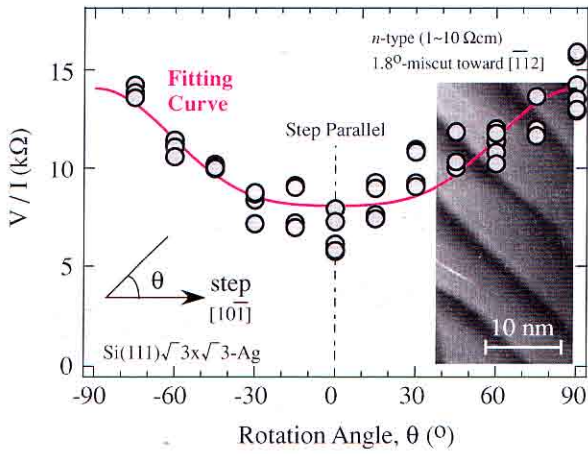


図7 微傾斜 Si(111) ウェハ上での  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面の回転正方マイクロ4端子測定. 各回転角 ( $\theta$ ) における抵抗値 ( $V/I$ ). 測定は室温で行われ, プロブ間隔は  $60 \mu\text{m}$ . 曲線は実験値を式 (8) によるフィッティングで得られた. 挿入図: 表面の STM 像.

本分のコンダクタンス値を直接決定することができる.

図7は,  $1.8^\circ$  傾いた微斜面上の  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面での抵抗を  $[1\bar{1}0]$  からの4本のプローブが作る正方形の回転角  $\theta$  に対してプロットしたものである. この回転正方マイクロ4端子測定の結果を式 (8) でフィッティングすると,<sup>34)</sup> ステップに平行な方向のシートコンダクタンス ( $\sigma_{\parallel}$ ) は  $23 \times 10^{-6} \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$ , ステップに垂直な方向のシートコンダクタンス ( $\sigma_{\perp}$ ) は  $14 \times 10^{-6} \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$  と求まり, 異方性 ( $\sigma_{\parallel}/\sigma_{\perp}$ ) は約 1.6 であると分かった. なお  $0.9^\circ$  傾いた微斜面では, ステップ密度が下がるのでさらに小さな異方性を観測した. 前述したようにこの  $\sigma_{\parallel}$  と  $\sigma_{\perp}$  のシートコンダクタンスの差は, 単原子ステップに起因している. このことから単位長さのステップを横切るときのコンダクタンス,  $\sigma_{\text{step}} (\Omega^{-1} \text{m}^{-1})$  を持つ単原子ステップが表面に密度  $N_{\text{step}} (\text{m}^{-1})$  で分布しているとき,

$$N_{\text{step}}/\sigma_{\text{step}} \sim 1/\sigma_{\perp} - 1/\sigma_{\parallel} \quad (9)$$

という関係がある. 今回実験で使用した  $1.8^\circ$  の微傾斜表面の場合,  $N_{\text{step}} \sim 10^8 \text{m}^{-1}$  であるので,  $\sigma_{\text{step}} \sim 3 \times 10^3 \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$  と求まった. この結果は前節で求めた STM/STS 観察によって見積もった電気伝導度とよく一致している.

次に, 表面の不均一性を利用したケースとして, ステップバンチング (step bunching) を含む表面 [図2(e)] の電気伝導測定の結果を示す. 実験では, まず約 300 本の単原子ステップが凝集したステップバンチング領域のある基板表面を用意した. そしてその上に Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag を作成して, マイクロ4端子測定をモノリシックプローブを用いて行った. 図8は測定時の SEM 像と4つのプローブの中心位置に対する電気抵抗の変化である.<sup>36)</sup> プローブ中心がテラス (ステップがない領域) 上 [挿入図 (a)] の場合と比べて, ステップバンチング領域にある場合では [挿入図 (b)] 測定値 (黒点) は約  $800 \Omega$  大きい. 先に説明したようにこの変化はあくまで測定結果 ( $V/I$  比) であり, 実際の表

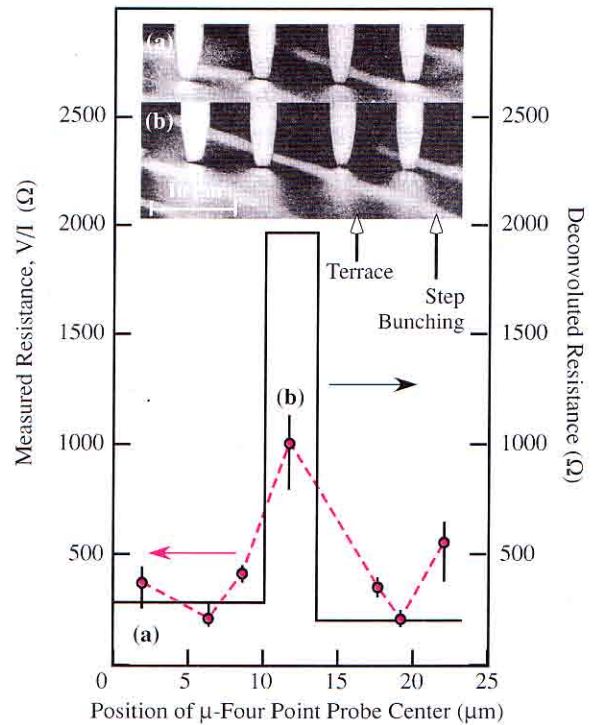


図8 モノリシックマイクロ4端子プローブ ( $8 \mu\text{m}$ -プローブ間隔) によるステップバンチングのある Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面の測定. 黒点は測定結果  $V/I$  ( $V$ : 内側の2つのプローブで計測された電位差,  $I$ : 外側の2つの電流プローブを流れる電流) で, 太線は実験値を (deconvolution) 解析して得られた抵抗値分布.<sup>37)</sup> 測定は室温で行われた. 挿入図: プローブの中心が (a) ステップフリー領域と (b) ステップバンチング領域にあるときの SEM 像.

面の抵抗変化を求めるには deconvolution 解析が必要である.<sup>37)</sup> その結果, 図8の太線に示したようにステップバンチング領域の有無により, 表面の抵抗は約  $1,700 \Omega$  変化する. 一方, ステップバンチ領域の抵抗と単原子ステップの抵抗との間には以下の関係がある.

$$R_{\text{SB}} = B_{\text{SB}} \cdot R_{\text{S}} = B_{\text{SB}} / (I_{\text{current}} \cdot \sigma_{\text{step}}) \quad (10)$$

ここで  $R_{\text{SB}}$  と  $R_{\text{S}}$  はそれぞれステップバンチ領域と原子ステップ1本分の抵抗 ( $\Omega$ ) である. すなわち測定された抵抗値から, 上記の式を用いて, 求めたいステップ1本分のコンダクタンス値を抽出する.  $B_{\text{SB}}$  はステップバンチ領域内のステップ数 (この場合約 300) であり,  $I_{\text{current}}$  はプローブ電流がステップを通過する幅 (m) である. この  $I_{\text{current}}$  値の決定には, Poisson 方程式に基づいた電流分布のシミュレーションが必要であるが, 図8(a) と (b) のようなステップバンチング領域を含む表面とプローブの配置について実際に計算するのは困難である. そこで我々は均一な表面系について, 本測定配置における電流分布をシミュレーションしたところ, 4つのプローブ端子が成す直線配列の垂直方向に対して電流プローブ間距離の2倍の範囲内に約90%の表面電流が広がっていることが分かった. 本マイクロ4端子測定の探針間隔  $8 \mu\text{m}$  では電流プローブ間隔は  $24 \mu\text{m}$  であり, その結果  $I_{\text{current}}$  は約  $50 \mu\text{m}$  と見積もった. そして  $R_{\text{SB}} = 1,700 \Omega$  を式に代入すれば  $\sigma_{\text{step}} \sim 4 \times 10^3 \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$  となる. この  $\sigma_{\text{step}}$  の値は先に求めた2つの結果とよく一致して

いる。

以上のように、本研究では 65 K での STM/STS 観察と室温での 2 種類の電気伝導測定の結果を比較した。その結果、表面電子のステップを通過する透過係数(反射位相シフト)はエネルギーに依存せず [図 4(d)], 式 (2) 適用の妥当性が確認された。この Landauer の近似では温度因子が相殺されるので、コンダクタンス値は温度に依存しない。<sup>14)</sup> 実際 65 K で見積もられたコンダクタンス値は、室温でのステップの電気伝導測定の結果と一致することが確認された。

#### 4. まとめ—単原子ステップを通過する電子の輸送過程

本研究では 3 つの独立の方法で金属単原子層表面上の単原子ステップを横切る方向の電気伝導度を測定した。そしてそれらの実験結果はほぼ同じで、単位長さ辺りの単原子ステップのコンダクタンス ( $\sigma_{\text{step}}$ ) は約  $5 \times 10^3 \Omega^{-1} \text{m}^{-1}$  であることが分かった。長さ 1 cm, 1 mm, 1  $\mu\text{m}$ , 1 nm のステップを電流が横切るとき、このコンダクタンス値から計算すると電気抵抗はそれぞれ 0.02, 0.2, 200,  $2 \times 10^5 \Omega$  となる。すなわちステップの抵抗はマクロスケールではほとんど無視できるが、ナノスケールの領域では無視できないほど大変大きい。

一方、本研究によって単原子ステップを通過する電子の輸送過程として、温度に依存しないトンネル過程モデルが適切であることが示唆された。そこで、 $\delta$  関数型ポテンシャルモデル<sup>13)</sup>を基に、そのポテンシャル障壁の大きさは  $4.5(\pm 2.5) \text{eV}$  と見積もられた。<sup>3)</sup> この値は光電子分光の測定から得られた Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面の仕事関数 ( $\sim 4.4 \text{eV}$ ) に近い。すなわち高さの異なるテラスを伝導電子が移動するモデルとして、真空準位に相当するエネルギー障壁をフェルミ電子がトンネル過程で通過するという描像が考えられる。一方、最近 Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面の原子ステップのコンダクタンスの強束縛模型に基づいた理論的計算が行われ、表面電子波がバルクバンドギャップ内のエヴァネッセント波と連続的につながるトンネル過程でも、本研究の結果を再現できることが分かった。<sup>39)</sup>

以上のように本研究では半導体表面上の金属単原子層での単原子ステップを通過する電子の輸送現象を様々な表面分析法を用いて詳細に調べた。その結果単原子ステップは原子スケールの電気抵抗体になり、またトンネルポテンシャル障壁としても機能することが分かった。ステップは固体表面上に必ず存在し、表面の化学組成、結晶方位によってその性質は異なり、さらに選択的に原子・分子を吸着させて修飾することもできる。すなわちこれら多種多様なステップはそれぞれ特有の電気(磁気)伝導を発現することが期待され、本研究で取り扱った単原子ステップはほんの一例に過ぎない。<sup>16, 17, 40-42)</sup> また本研究の電気伝導測定は室温で行われ、ステップ間隔(数十 nm)が室温における表面電子のコヒーレンス長や非弾性散乱距離に比べて十分に長

く、<sup>2, 15, 38)</sup> 隣接するステップでの電子散乱の影響が互いに無視できたので、Landauer の式 (2) が適用できた。そのため冷却などでこれらの距離を伸ばし、さらにプローブ間隔を狭めて互いの長さを近づけたら、4 端子の Landauer-Büttiker の式の適用ができるようになり、また、複数のステップ間で多重散乱を伴う弾道電子の伝導や位相干渉を含む電気伝導の研究が可能となる。<sup>12, 14)</sup> ステップの電子輸送機構の統一的理解のために今後さらにこの表面動的現象の研究が進められなければならない。そして、最近急激に微細化が進むテクノロジーが表面第一層の制御を要求するレベルまで達したとき、ステップはもはや排除すべき欠陥ではなく原子スケールの回路素子として利用できるかもしれない。

本稿では、マイクロ 4 端子プローブおよび独立駆動型 4 探針走査型トンネル顕微鏡といった新しい実験手法が、表面第一層での電気伝導測定に極めて有効である一例を示した。その開発は国内外でも現在進められ、表面系に限らず、ナノチューブやナノワイヤーといった個々のミクロな物質の電気伝導測定にも用いられている。<sup>7, 43, 44)</sup> 一方、最近金属探針の先にカーボンナノチューブを取り付けたプローブが開発され、<sup>45)</sup> 我々は極低温型に改造した 4 探針走査型トンネル顕微鏡システムと組み合わせることでグリーン関数の直接観測に挑戦している。<sup>29, 46)</sup> このように本稿で紹介した新技術はこれからも発展し続け、さらにその応用範囲も広がり、今後のナノサイエンス・ナノテクノロジー研究に不可欠な測定ツールになるのは間違いない。

塚田捷教授、名取晃子教授、長谷川幸雄助教授、Han Woong Yeom 助教授、Wolf-Dieter Schneider 教授、小林功佳教授、笠井秀明教授、中西寛博士にはご指摘を賜りとても感謝いたしております。守川春雲博士、劉燦華博士、谷川雄洋博士、上野将司氏、平原徹氏、金川泰三氏、沖野泰之氏、山崎詩郎氏、吉本真也氏、坂本克好氏には、研究全般にわたって補助を賜り感謝いたしております。本研究は科学研究費補助金の援助を受けて行われました。

#### 参考文献

- 1) 長谷川修司:「シリコン表面超構造の物理—2次元および1次元金属—」日本物理学会誌 **54** (1998) 347.
- 2) I. Matsuda, T. Hirahara, M. Konishi, C. Liu, H. Morikawa, M. D'angelo, S. Hasegawa, T. Okuda and T. Kinoshita: Phys. Rev. B **71** (2005) 235315.
- 3) I. Matsuda, M. Ueno, T. Hirahara, R. Hobara, H. Morikawa and S. Hasegawa: Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 236801.
- 4) I. Matsuda, H. Morikawa, C. Liu, S. Ohuchi, S. Hasegawa, T. Okuda, T. Kinoshita, C. Ottaviani, A. Cricenti, M. D'angelo, P. Soukiassian and G. LeLay: Phys. Rev. B **68** (2003) 085407.
- 5) H. Morikawa, I. Matsuda and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **70** (2004) 085412. Phys. Rev. Lett., in press.
- 6) H. Okino, R. Hobara, I. Matsuda, T. Kanagawa and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **70** (2004) 113404.
- 7) H. Okino, I. Matsuda, R. Hobara, Y. Hosomura, S. Hasegawa and P. A. Bennett: Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 233108.
- 8) M. Ueno, I. Matsuda, C. Liu and S. Hasegawa: Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 4894.

- 9) 「特集 半導体表面のステップダイナミックス」表面科学 **20**(12) (1999) 1.
- 10) K. Yagi, H. Minoda and M. Degawa: Surf. Sci. Rep. **43** (2001) 45.
- 11) 荻野俊郎, 本間芳和, 日比野浩樹, 小林慶裕, 住友弘二, K. Prabhakaran, 尾身博雄: 「自己組織化による Si ナノ構造のウェーハスケール制御」表面科学 **19** (1998) 557; H. Omi, Y. Homma, T. Ogino, S. Stoyanov and V. Tonchev: J. Appl. Phys. **95** (2004) 263.
- 12) 川畑有郷: 「電気伝導の理論—ランダウアーの公式—」日本物理学会誌 **55** (2000) 256.
- 13) J. H. Davies: *The Physics of Low-Dimensional Semiconductors* (Cambridge Univ. Press, 1998).
- 14) S. Datta: *Electronic Transport in Mesoscopic Systems* (Cambridge Univ. Press, 2002).
- 15) T. Hirahara, I. Matsuda, M. Ueno and S. Hasegawa: Surf. Sci. **563** (2004) 191.
- 16) M. F. Crommie, C. P. Lutz and D. M. Eigler: Nature **363** (1993) 524.
- 17) Y. Hasegawa and P. Avouris: Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 1071.
- 18) N. Sato, T. Nagao, S. Takeda and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **59** (1999) 2035.
- 19) 長谷川幸雄: 「STM/STS による表面電子定在波の直接観察」固体物理 **29** (1994) 698.
- 20) L. Bürgi, O. Jeandupeux, A. Hirstein, H. Brune and K. Kern: Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 5370.
- 21) M. F. Crommie, C. P. Lutz, D. M. Eigler and E. J. Heller: Surf. Rev. Lett. **2** (1995) 127.
- 22) P. Avouris, I.-W. Lyo, R. E. Walkup and Y. Hasegawa: J. Vac. Sci. Technol. B **12** (1994) 1447.
- 23) C. Bai: *Scanning Tunneling Microscopy and its Application* (Springer, 1995).
- 24) L. J. van der Pauw: Philips. Res. Repts. **13** (1958) 1; H. C. Montgomery: J. Appl. Phys. **42** (1971) 2971.
- 25) O. Pfennigstorf, A. Petkova, H. L. Guenster and M. Henzler: Phys. Rev. B **65** (2002) 045412.
- 26) K. Yoo and H. H. Weitering: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 026802.
- 27) T. Tanikawa, I. Matsuda, R. Hobara and S. Hasegawa: e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **1** (2003) 50.
- 28) S. Hasegawa, I. Shiraki, F. Tanabe, R. Hobara, T. Kanagawa, T. Tanikawa, I. Matsuda, C. L. Petersen, T. M. Hansen, P. Boggild and F. Grey: Surf. Rev. Lett. **10** (2003) 963.
- 29) 長谷川修司, 白木一郎, 田邊輔仁, 保原 麗, 金川泰三, 松田 巖: 電子顕微鏡 **38** (2003) 36.
- 30) J. D. Wasscher: Philips. Res. Repts. **16** (1961) 301.
- 31) <http://www.capres.com/>
- 32) T. Tanikawa, K. Yoo, I. Matsuda, S. Hasegawa and Y. Hasegawa: Phys. Rev. B **68** (2003) 113303.
- 33) T. Tanikawa, I. Matsuda, T. Kanagawa and S. Hasegawa: Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 016801.
- 34) T. Kanagawa, R. Hobara, I. Matsuda, T. Tanikawa, A. Natori and S. Hasegawa: Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 036805.
- 35) J. Viernow, J.-L. Lin, D. Y. Petrovykh, F. M. Leibsle, F. K. Men and F. J. Himpsel: Appl. Phys. Lett. **72** (1998) 948.
- 36) S. Hasegawa, I. Shiraki, T. Tanikawa, C. L. Petersen, T. M. Hansen, P. Boggild and F. Grey: J. Phys. Condens. Matter **14** (2002) 8379.
- 37) T. M. Hansen, K. Stokbro, O. Hansen, T. Hassenkam, I. Shiraki, S. Hasegawa and P. Boggild: Rev. Sci. Instrum. **74** (2003) 3701.
- 38) 非弾性散乱長は光電子分光と表面電気伝導の結果から見積もられた。<sup>2)</sup> 一方, 異なるテラスの電子波間で干渉があった場合ステップ垂直方向の分散は離散化する<sup>41, 42)</sup>が, 実際に Si(111) 微斜面ウェーハ上の  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 超構造の光電子分光測定した結果, 図2と同じになることを確認した。

- 39) K. Kobayashi: Surf. Sci. **583** (2005) 16.
- 40) M. Yukawa, S. Tatsumi, H. Kitagawa and S. Iida: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) 8248.
- 41) A. Mugarza, A. Mascaraque, V. Perez-Dieste, V. Repain, S. Rousset, F. J. GarciasdeAbajo and J. E. Ortega: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 107601.
- 42) S. Shiraki, H. Fujisawa, M. Nantoh and M. Kawai: Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 96102.
- 43) O. Kubo, Y. Shingaya, M. Nakaya, M. Aono and T. Nakayama: Appl. Phys. Lett. **88** (2006) 254101.
- 44) R. Hobara, S. Yoshimoto, T. Ikuno, M. Katayama, N. Yamauchi, W. Wongwiriyan, S. Honda, I. Matsuda, S. Hasegawa and K. Oura: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L1081.
- 45) T. Ikuno, M. Katayama, M. Kishida, K. Kamada, Y. Murata, T. Yasuda, S. Honda, J. Lee, H. Mori and K. Oura: Jpn. J. Appl. Phys. **43** (2004) L644.
- 46) Q. Niu, M. C. Chang and C. K. Shih: Phys. Rev. B **51** (1995) 5502.

## 著者紹介



松田 巖氏: 専門は物性物理と物理化学。現在は固体表面上低次元金属のフェルミ面とその相転移・電子輸送現象の研究に取り組んでいる。

保原 麗氏: ナノスケールの電子輸送現象に興味を持っている。多探針 STM の開発を行い, それを用いた電気伝導測定を行っている。

長谷川修司氏: 専門は, 表面物理実験。表面や超薄膜系での構造と電子物性を研究している。2005年の物理チャレンジと2006年の物理オリンピックに関わり, 貴重な体験をした(している)。

(2006年2月14日原稿受付)

## Surface Free-Electron Crossing a Single Atomic Step

Iwao Matsuda, Rei Hobara and Shuji Hasegawa

abstract: We have succeeded in measuring electrical conductance across a single atomic step through a monatomic-layer of free-electron-like metal on a crystal surface, using three independent methods, which yielded the consistent values. The first method was the analysis of electron standing waves near step edges observed by scanning tunneling spectroscopy, combined with the Landauer formula for 2-D conductors. The other two methods were direct surface transport measurements with monolithic microscopic four-point probes and four-tip scanning tunneling microscope probes, which have been developed by us. Details of the electron transport across an atomic step and the conductance measurement procedures are described.