

(続紙 1)

京都大学	博 士 (理 学)	氏名	黒石 健太
論文題目	Si(111)基板上に作製したインジウム超薄膜の電子状態とトンネル電子誘起発光		
(論文内容の要旨)			
数原子層の薄さの金属(金属超薄膜)では、面直方向の電子の閉じ込めに起因する離散的な電子状態、いわゆる量子井戸状態(quantum well state, QWS)が形成される。QWSは金属超薄膜の様々な物性にも影響を与えることが知られており、発光特性にも影響を与えると考えられる。特に走査トンネル顕微鏡(scanning tunneling microscopy, STM)が誘起する発光の特性を、超薄膜の層数によって制御できると期待される。しかし広い膜厚範囲で金属超薄膜の層数を1原子層ずつ変化させ、QWSとSTM発光特性の対応を調べた研究は報告されていない。本研究ではまず、Si(111)基板に作製したインジウム(In)の3原子層超薄膜について、これまで議論が続いていたその原子構造と電子状態を明らかにした。続いて4-8原子層の超薄膜を作製し、それぞれの層数でQWSとSTM発光特性の関係について調べた。 Si(111)基板上にInを吸着させた系は低次元金属の物性を調べるための理想的な系として古くから研究されてきた。3原子層In超薄膜の構造は複数のグループが異なる原子構造を提唱している。最初にSTMと低速電子回折(low electron energy diffraction, LEED)を用いて、3原子層In超薄膜の構造を明らかにした。3原子層超薄膜で測定したLEEDでは、(5.5×5.5)倍周期に対応する衛星スポットが強い強度で現れた。また(5.5×5.5)周期スポットの間に比較的弱い強度で、(11×11)周期に対応するスポットが観測された。STM測定では、(5.5×5.5)周期に並ぶ輝点が観測された一方で、特定のバイアス電圧では(11×11)周期の模様を示した。LEEDとSTMの結果から、Si(111)基板上の3原子層超薄膜は、Si(111)面に対して最充填配列In(111)膜が11:13の比で整合した構造を持ち、格子定数の違いで生じるモアレ模様が強い強度の(5.5×5.5)周期のLEED衛星スポットとSTM像の輝点に現れている、と結論した。角度分解光電子分光によるフェルミ面マッピングとバンド分散測定では、二つの自由電子的な占有状態とSi(111)面とIn(111)膜の(1×1)ブルリアンゾーン境界でのバンドの折り返しを観測した。In₂原子層超薄膜と(In, Mg)合金3原子層超薄膜の実験との比較から、基板側In原子層がSi(111)基板のダングリングボンドを終端し、表面側の2原子層が自立した状態に近い電子状態を形成していると考えられる。 STMが誘起する発光(STM発光)は局在表面プラズモンを励起する機構によって発生することが知られている。非弾性トンネル確率は試料の電子状態を反映するため、QWSによってSTM発光特性を制御できると期待される。3原子層In超薄膜に追加でInを蒸着することで、4-8原子層の超薄膜が層状成長する様子をSTMで観測した。それぞれの層数で超薄膜は基板に対して(√3×√3)倍周期に並んだ輝点を示した。走査トンネル分光による電子状態の調査の結果、QWSに由来するピークを観測し、層数に応じてエネルギーが変化する様子を確認した。実験値は位相蓄積モデルを用いた計算によって再現することができた。In超薄膜上で測定したSTM発光スペクトルには、バイアス電圧が大きくなるにしたがって高エネルギー側にシフトするピークが現れた。ピーク位置は探針のフェルミ準位からQWSへの非弾性トンネル過程で生じる発光のエネルギーに対応している。さらに4-8原子層のそれぞれでQWSのエネルギーに対応したバイアス電圧-発光エネルギー特性を確認し、超薄膜の層数によってSTM発光特性が制御されることが明らかになった。			

(続紙 2)

(論文審査の結果の要旨)

金属薄膜に閉じ込められた量子井戸準位は表面物理において古くから研究対象とされ、それに起因する特異な表面物性が報告されてきた。例えば量子井戸準位が膜厚に依存するため、膜厚を一層ずつ調整することで薄膜の仕事関数を制御できることが知られている。申請者はインジウム薄膜の発光特性に注目し、量子井戸準位を用いて発光特性を膜厚により制御することを目的とした。

量子井戸準位を規定するためには薄膜の構造と電子状態の知見が必要である。そこでまず、Si(111)を基板としてインジウム薄膜の成長過程について調べた。従来の研究でインジウム単層と2層の構造はよく知られていたが、3層目の構造や電子状態については論争があった。そこで申請者は走査トンネル顕微鏡(STM)と低速電子回折を組み合わせることで、シリコンに対してインジウムが11:13で整合する長周期構造を形成することを明らかにした。さらに、11:13の2原子差で整合することに起因して、擬5.5倍のモアレパターンが形成することも明らかにした。このモアレパターンに対する不十分な解釈が論争の原因となっていたことを突き止めた。

次に4~8原子層の薄膜を作製し、その構造と電子状態についてSTMを用いて観測した。構造については3層目とは異なる $\sqrt{3}$ 周期構造を形成することを見出した。4層目以上ではインジウム薄膜の成長に対してシリコン基板の影響が小さくなっていることを示唆する結果である。電子状態については膜厚に依存してエネルギーシフトする状態密度を観測し、解析の結果、これらをインジウム薄膜に閉じ込められた量子井戸準位に帰属した。さらに、薄膜からのSTM誘起発光を測定し、そのスペクトルが膜厚によって変化することを確認した。放出される光のエネルギーが、試料と探針のフェルミ準位差から、量子井戸準位のエネルギーを引いた値に等しいことを見出し、その結果、トンネル電子の量子井戸準位への非弾性トンネル遷移を介して発光が起こっていることを明らかにした。このことから、試料-探針間のバイアス電圧や膜厚を変化させることで放出する光のエネルギーを制御できることを示した。

以上のように、申請者はシリコン基板上のインジウム薄膜について、3原子層以上の膜厚の構造について調べ、特に3原子層構造に関する従来の論争を解決した。さらに4~8原子層のインジウム薄膜についてSTM発光を観測し、その光エネルギーが探針のフェルミ準位から薄膜の量子井戸準位への非弾性トンネル遷移により決定されること、従って膜厚を調整することでSTM発光特性を制御できることを示した。原子層レベルで作製した金属薄膜について、その量子井戸準位を利用した発光過程は、学術的な側面だけでなく光電子工学においても注目されており、本論文はその基礎を築いたものである。よって、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、令和6年5月29日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日： 年 月 日以降