

1 原子層ごとに変化する STM 誘起発光特性

黒石 健太 〈東京大学物性研究所 kkuroishi@issp.u-tokyo.ac.jp〉

奥山 弘 〈京都大学大学院理学研究科 hokuyama@kuchem.kyoto-u.ac.jp〉

走査トンネル顕微鏡 (STM) は、原子スケールの空間分解能を持つ顕微鏡として、固体表面の構造や電子状態を直接観測できる強力な手法である。STM は金属探針を試料表面に 1 nm 程度まで近づけて測定を行うため、試料と STM 探針で構成されるトンネル接合は、ナノスケールの光学キャビティとして振る舞う。トンネル電子の一部が非弾性散乱を起こすと、トンネル接合に局在する表面プラズモンモードが励起され、その放射減衰として光子が放出される。これが **STM 誘起発光 (STML)** である。

STML の特徴は、発光がナノスケールの局所空間から生じ、かつトンネル電子が関与する電子状態を反映する点にある。発光スペクトルは、ナノキャビティの電磁モード構造だけでなく、非弾性トンネルに関与する電子状態にも左右される。したがって、試料の電子状態を通じて STML を制御することで、エネルギー調整可能なナノスケールの光源を実現することができる。

このような観点から重要となるのが、試料の電子状態をどのように設計するかである。分子線エピタキシー技術を用いて数原子層の厚さの金属薄膜 (超薄膜) を作製すると、電子の運動は膜厚方向に閉じ込められ、**量子井戸状態**と呼ばれる離散的なエネルギーを持つ状態が形成される。量子井戸状態のエネルギーは膜厚に強く依存し、1 原子層の違いで大きく変化する。このため、量子井戸状態は仕事関数や表面反応性などが膜厚に対して周期的に変調される量子サイズ効果の起源として古くから研究されてきた。我々は、金属超薄膜の膜厚を 1 原子層ずつ変化させて STML スペクトルを

測定することで、量子井戸状態を利用した STML 特性の制御を試みた。

超薄膜は、Si(111) 面にインジウムを蒸着することで作製した。STM 観察の結果、4-8 原子層の膜厚範囲において、超薄膜が同一の結晶構造を保ったまま 1 原子層ずつ成長することを確認した。さらに、微分伝導度測定によって局所状態密度を調べた結果、超薄膜中に形成される量子井戸状態のエネルギーが膜厚に応じて規則的に変化する様子が観測された。また、量子井戸状態のエネルギーと膜厚の関係は、バルクのバンド分散を用いたモデル計算の結果とおおよそ一致した。

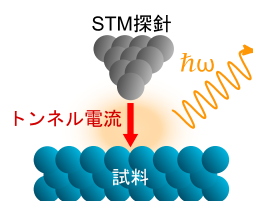
STML スペクトルを膜厚ごとに測定すると、発光エネルギーがトンネル接合に印加する電圧に対して線形に増加し、その切片が量子井戸状態のエネルギーと対応することが明らかになった。これは、非弾性トンネル過程において量子井戸状態が主要な終状態として関与し、光子エネルギーが探針側フェルミ準位と量子井戸状態のエネルギーの差で決まっていることを示している。すなわち、膜厚というパラメータを通じて、STML のエネルギーを原子層数で制御することが明らかになった。

一方、電圧を負バイアス、すなわち試料側占有状態から探針側に電子が流れる条件下では、非弾性トンネル過程に量子井戸状態が関与しないため、電圧に対して線形にエネルギーが増加する発光は観測されなかった。また、他の金属薄膜系で報告されている量子井戸状態間の放射遷移による発光も本系では観測されず、基板のバンド構造が発光効率を左右することが示唆される。

用語解説

STM 誘起発光：

STM では、試料と探針の間に形成されるナノスケールの空間 (トンネル接合) に、局在表面プラズモンモードが生じる。STM に流れるトンネル電子には、弾性的に試料-探針間をトンネルするものだけでなく、このプラズモンモードを励起しながら非弾性的にトンネルするものも存在する。励起されたプラズモンモードが放射減衰する際に光が放出される現象を、STM 誘起発光 (STML) という。



量子井戸状態：

原子層レベルの厚さを持つ金属膜には、厚さ方向の電子の運動が制限され離散的な状態 (量子井戸状態) が現れる。量子井戸状態のエネルギーは膜厚に強く依存し、原子層数が変わるとそのエネルギーも大きく変化する。

