

令和 元年 6月 18日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H05984

研究課題名（和文）相互作用する/シリセン/トポロジカル原子スイッチの創生

研究課題名（英文）Fabrication of Interacting, Silicene, Topological atom switch

研究代表者

山崎 詩郎 (Yamazaki, Shiro)

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：70456200

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 18,200,000円

研究成果の概要（和文）：走査プローブ顕微鏡はとても鋭い探針を使って一つ一つの原子を見ることができる。その探針を使えば原子を一つ一つ動かすことができる。今回、走査プローブ顕微鏡を組み立てて、シリコン原子4つだけからなる原子サイズのスイッチを作成した。二つのシリコン原子スイッチがとても近くにある時は、お互いに影響を及ぼしあっていることを発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、半導体素子の微細化が急速に進んでいるが、そろそろ限界にきている。そのため、原子一つ一つから素子を組み立てるナノテクノロジーが注目されている。シリコン原子スイッチは原子数個でできており、問題を根本的に解決する一歩となる可能性がある。さらに、相互作用があることから、原子レベルでの計算に応用できる。さらに、シリコンに代わる次世代材料であるグラフェンやトポロジカル絶縁体においても、その探求を行った。

研究成果の概要（英文）：Scanning probe microscope is capable of observing an atom by using very sharp probe. Using the probe, the microscope can move an atom one by one. Here, we assembled a scanning probe microscope, and fabricated an atomic-size switch consisting of only four silicon atoms. It was found that two silicon atom switches were affecting each other when they were very close to each other.

研究分野：表面科学

キーワード：走査トンネル顕微鏡 原子間力顕微鏡 原子スイッチ 原子操作 表面 薄膜

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

走査トンネル顕微鏡 (STM) は鋭い探針を観察対象にトンネル領域まで近づけて走査することで、原子分解能像を得ることができる強力な顕微鏡である。さらに、探針で対象を“触る”ことで原子を一つ一つ動かす原子操作が可能な点が他の顕微鏡にはない特徴である。特に、原子操作によって2つの基底状態の間で変形するものは原子スイッチと呼ばれる。1991年に世界初の原子スイッチ (D. Eigler, et al., Nature 352, 600 (1991)) が報告されてから、新たな動作原理や応用可能性を備えた100を超える原子/分子スイッチが報告されてきた (Science 306, 242 (2004), Science 317, 1203 (2007), Nat. Nanotechnol. 8, 46 (2012))。このような原子スイッチは限界を迎えつつあるトップダウン型の半導体微細化技術を根本的に解決する、ボトムアップ型の次世代エレクトロニクスの要素技術として、応用面からも期待がもたれている。

しかしながら、原子スイッチのほとんどが理想的に準備された金属表面上での極低温 (4K) での実験に限定され、現代の半導体産業と親和性の無いものであった。また、動作原理はトンネル電流のみによってランダム的に駆動するものであった。さらに、論理演算に必要な原子スイッチ間の相互作用の研究はほとんどなかった。

研究代表者は、半導体である Si (111)-7×7 半導体表面上に原子操作によって4つの Si 原子が傾いて結合した Si<sub>4</sub> 原子スイッチを作成することに成功した。さらに、STM のトンネル電流だけでなく、原子間力顕微鏡 (AFM) の探針相互作用力によって一方向に駆動させ、さらに STM と AFM を組み合わせることで任意の方向に自由自在に原子スイッチさせることに成功した [論文 Nano Letters]。

シリセンは、グラフェンの Si 版であり、Si 原子がハニカム格子状に配列した2次元結晶である。グラフェン同様に線形なバンド分散を持つ Dirac 電子系を有するが、グラフェンと異なり Si 原子は一つおきに上下に座屈している。既存の Si テクノロジーとの親和性もありトランジスタへの応用が期待されている。また、Bi 薄膜などのトポロジカル絶縁体は、グラフェン同様に線形な分散を持つだけでなく、カイラル Dirac 電子と呼ばれるスピン流がエッジに流れている。そのためスピンで情報を処理するスピントロニクスへの応用が期待されている。このような、次世代材料として期待されるシリセン/トポロジカル絶縁体上での原子スイッチの研究はまだ存在していない。原子スイッチの機構にはその電子状態が深くかかわっているため、このような特異な電子系におけるその機構には興味もたれている。

### 2. 研究の目的

本研究計画では、走査トンネル顕微鏡を用いて、相互作用する原子スイッチやシリセン/トポロジカル原子スイッチの創生に挑む。まずは、隣接する Si<sub>4</sub> 原子スイッチ間の相互作用を解明し、何が (自分のスイッチ状態等) 何を (相手のバリアー等) 変える相互作用なのかを調べる。さらに論理演算を行うことを目指す。さらにグラフェンやトポロジカル系上での原子スイッチの動作を目指し、Dirac 電子系での原子スイッチの機構は何が (電子励起寿命、振動モード) 違うのかに切り込む。

### 3. 研究の方法

原子を一つ一つ動かす原子スイッチには高い STM/AFM 探針の自由度と高い STM/AFM 本体の安定性が求められる。そのため、研究計画の遂行に必須の新型の STM コントローラーと STM 本体を導入し、改造により原子操作に必須の AFM 機能を追加する【装置改造 1, 2】。研究計画では、まず Si<sub>4</sub> 原子スイッチを集積化し相互作用【課題 1-1】と論理演算【課題 1-2】を行う。続いて、究極の Si 系といえるシリセン上でシリセン原子スイッチの創生に挑む【課題 1-3】。最後に、Bi 薄膜から原子操作により任意形状のトポロジカル絶縁体のパターンニングを行い【課題 2-1】、トポロジカル原子スイッチの創生と機構の解明に挑む【課題 2-2】。

原子スイッチの研究は手順で行う。

(i) 原子スイッチを起さないように低電圧/低電流を用いて基底状態の STM 画像を得る。理論計算により基底状態の STM 画像を再現する原子構造モデルを探し確定する。

(ii) 高電圧/高電流を用いて STM 画像の変化から原子スイッチが起きることを確かめる。理論計算により基底状態間のエネルギーバリアーを計算し、原子スイッチが可能か確かめる。

(iii) 原子スイッチ上で探針の高さを固定し、電流の変化からスイッチ頻度を調べる。

(iv) スイッチ頻度の電流依存性を調べる。比例なら一電子過程の電子励起のスイッチである。もし比例でなければ AFM 機能で力励起の原子スイッチの可能性を検討する。

(v) スイッチ頻度の電圧依存性からスイッチが始まる電圧のスレッシュホールドを調べる。状態密

度 (DOS) とその寿命と比較し、どの電子状態がエネルギーを供給するか特定する。

#### 4. 研究成果

##### 【装置の立ち上げ】

装置の立ち上げに対しては本研究計画のエフォートの大部分が費やされた。

##### 【装置改造1：原子スイッチのためのデジタル式 STM コントローラー導入】

原子スイッチに必要な要素は、探針位置を原子の上で自由に位置決めし、プログラムしたタイミングでパルス電圧をかける高い探針の自由度である。共同研究者と打ち合わせを繰り返し、複数回の現地調査を行い、世界的に相次いで採用されているデジタル式 STM コントローラーである独国内務省のナノニクス社 Nanonis を計画通りに導入した。6つの要素(走査プローブ顕微鏡制御装置 RC5、シグナル変換機 SC5、ピエゾモータドライバーPMD4、高電圧アンプセット HVA4、高電圧電源 HVS4、AFM 用オシレーションコントローラ OC4) から成るコントローラーをすべて組み合わせ、走査プローブ顕微鏡の正しいスキャン信号等が出力されていることをオシロスコープによって確認した。

##### 【装置改造2：原子スイッチのための極低温型 STM の導入への準備】

原子スイッチに必要な要素は、試料/装置が長短時間熱変形で動かない試料/装置の安定性である。原子スイッチの研究には3日連続で同じ原子のど真ん中で数百回原子スイッチを繰り返すなど高いレベルの安定性が求められる。そのため、低温での安定性に定評があるトップロード型の UNISOKU 社製極低温型 STM の導入が求められていた。しかしながら、本研究計画の範囲でそのすべてを準備するのは困難であった。まず、装置を設置するために実験室を借り、清浄な環境とインフラの整備を1年程度かけて入念に行った。その後、他大学との共同研究により、複数回の事前調査を行い、UNISOKU 社製低温 STM を現所属へ搬入した。引き続き、除振台の底上げ工事を進め、STM として再稼働させる。将来的には、AFM 機能に必要な加振と検出を行う2本の電気配線を組み込む改造と開発を行う。

東大、東工大との共同研究により STM の立ち上げに必要な真空備品を数十点程度搬入した。当初の研究計画では真空備品として消耗品のみを購入する予定だったが、方針を変更してより高度な物品を揃えた。(超高真空計 コントローラ アジレント社製・XGS600(UHV24 4 系統仕様)、ターボ分子ポンプ 独国内務省社製 HiPase300/TC400、質量分析計 独国内務省社製 QMG250M1)

##### 【主な研究成果】

Si4 に関する研究で堅実な成果を挙げた。

##### 【計画1：隣接する双子 Si4 原子スイッチ間の相互作用の解明】

研究代表者は2つの Si4 原子スイッチが隣接した双子 Si4 原子スイッチの作製に成功し、相互作用の存在を明らかにした。まず、原子スイッチが起きない低電圧/低電流で STM 測定を繰り返し、双子 Si4 原子スイッチの基底状態が予想通り  $2 \times 2 = 4$  種類であることを確認した。その存在比は均等な  $1/4$  ではなく、大きな偏りがあることがわかった。この時点で、少なくとも2つの Si4 原子スイッチは独立ではなく、相互作用があることが明らかになった。これは、4つの基底状態のエネルギーの縮退が解けたことを意味する。さらに、高電圧/高電流で STM 測定を行い、STM 像変化から原子スイッチを直接確認した。4つの状態間のスイッチ方向の頻度に著しい偏りがあり、ここからも相互作用の存在が明らかになった。共同研究者による理論計算から、STM 像を再現する双子 Si4 原子スイッチの構造モデルの同定にも成功した。次に、定量解析から、4基底状態間の  $4 \times 3 = 12$  種類のスイッチ効率を求めた。ここから、一方のスイッチ状態が他方のスイッチバリアーを下げる Si 原子触媒効果があることがわかった。現在、このバリアーの低下を理論計算から導くことを目指している。

これらの研究成果は、2回の国際招待講演(上海交通大学、上海交通大学2回目)、5回の国際学会(NC-AFM2018, ACSIN2016, ICSPM, NC-AFM2017, ISSS8)、3回の国内招待講演(横浜国立大学、日本表面真空学会、OIST)、2回の国内学会(表面科学学術講演会、日本応用物理学会)

での発表があった。現在、論文の準備が進んでいる。この研究は一定の成果が得られたが、引き続き、複数の Si4 原子スイッチ回路による論理演算の実証、また AFM の力による双子 Si 原子スイッチの動作、周辺の分子との原子/分子スイッチの連動などの研究に広げていく予定である。

#### 【研究成果の広がり】

本研究計画の準備に当たる試料作製から予想以上に派生の研究が広がった。

#### 【計画 2-1：ディラック系原子スイッチの準備、グラフェンの研究】

グラフェンの作成を行う過程において、液滴法を用いた折り曲げ欠陥を持つグラフェンの作成と AFM、SEM による詳細な解析を行った[論文]。さらに、グラファイトの回転積層欠陥であるモアレ構造上でファンホッフ特異点と鏡像準位を観測した [国際学会]。現在、関連してシリセンの作成を継続している。

#### 【計画 2-2：トポロジカル原子スイッチの準備、Bi 超薄膜の研究】

トポロジカル絶縁体の作成を目指す過程で、Bi (110) 超薄膜の原子構造と電子状態が偶数層と奇数層で異なる偶奇性を示すことを STM および STS により発見した[論文 PRB、国際会議 ACSIN-14、発表日本物理学会、顕微ナノ学会]。さらに、Bi を 150K で低温蒸着することでトポロジカル状態と予測される低膜厚の Bi (111) 面を局所的に作成し[国際学会発表]、STM で 5nm 程度に局在した +200mV のエッジ状態のピークの兆候を得た。STM の探針の効果によって原子構造が変化する原子操作の兆候が得られている。現在、このような超薄膜のスイッチ現象の再現性や、電圧電流依存性とその機構の追及が進められている。このような表面界面の研究に関連して、Ag 薄膜の界面構造の解明[論文 JJAP、解説表面と真空、発表物理学会]、Ag 薄膜の鏡像準位状態[論文 PRB、発表物理学会、表面真空学会]があった。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件) (全て査読あり)

1. Si (111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B 基板上的 Ag (111) 超薄膜の STM 像に現われる埋もれた界面構造、福元博之、吉池雄作、田尻寛男、山崎詩郎、中辻寛、平山博、表面と真空、61、657-662 (2018)
2. X-ray structural analysis of epitaxially grown Ag film/Si (111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B substrate interface, Y. Yoshiike, H. Tajiri, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, Japanese Journal of Applied Physics, 57, 075701-1-8 (2018)
3. Structure and growth of Bi (110) islands on Si (111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B substrates, K. Nagase, I. Kokubo, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, Physical Review B, 97, 195418-1-8 (2018)
4. Interaction of Stark-shifted image potential states with quantum well states in ultra-thin Ag (111) films on Si (111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B substrates, K. Sugawara, K. Nagase, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, Physical Review B, 96, 75444 (2017)
5. Size, shape, and number density of deposits in the graphene solution liquid droplet method, Takagi Yuka, Yamazaki Shiro, Nakatsuji Kan, Hirayama Hiroyuki, Materials Today Communications, 13, 65-71 (2017)
6. Mechanical properties of In/Si (111)-(8 $\times$ 2) investigated by atomic force microscopy, Kota Iwata, Shiro Yamazaki, Akitoshi Shiotari and Yoshiaki Sugimoto, Japanese Journal of Applied Physics, 56, 15701 (2017)

[学会発表] (計 49 件) (うち招待講演 6 件、うち国際学会 15 件のみ厳選記載)

1. Electronic Structure of Bi (110) Islands Grown on a Si (111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B Substrate, K. Nakatsuji, Y. Shimokawa, T. Fujiwara, K. Nagase, S. Yamazaki, Y. Watanabe, K. Mase, K. Takahashi and H. Hirayama, 14th International Conference on Atomically Controlled

2. Atomic Structure and Growth of Bi(110) Islands on Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B Substrates, K. Nagase, I. Kokubo, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-14) (国際学会), 2018
3. Suppression of Metal-Insulator Transition by Electron Doping from Substrates to Indium Atomic Wires: Si(111)4 $\times$ 1-In, T. Ogino, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-14) (国際学会), 2018
4. AFM vs STM on Si atom switch, S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek, S. Morita, 21th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (国際学会), 2018
5. AFM and STM-induced Si atom switch, S. Yamazaki, The International Workshop: New Developments in STM on Surfaces of Functional Materials (招待講演) (国際学会), 2018
6. STMとAFMを同時に用いた原子スイッチの競合、山崎詩郎、日本表面真空学会 第3回関東支部大会 (招待講演)、2018
7. Atom switch and atom-scale transport using STM, 山崎詩郎、沖縄科学技術大学院大学 招待セミナー (招待講演), 2018
8. AFM/STM-induced atom-scale catalytic switching of molecule-like Si, S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek and S. Morita, Forefront of Molecular Dynamics at Surfaces and Interfaces (国際学会), 2017
9. AFM/STM-induced Interacting Si atom switch, S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek and S. Morita, The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8) (国際学会), 2017
10. Atom switch and atom-scale transport using scanning probe microscopy, Shiro Yamazaki, Shanghai Jiaotong University (招待講演) (国際学会), 2017
11. Even-odd-parity and electronic structure of Bi(110) ultra-thin films, K. Nagase, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8) (国際学会), 2017
12. Electron doping induced control of Metal-Insulator transition on Si(111)4 $\times$ 1-In surface, T. Ogino, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8) (国際学会), 2017
13. Electronic structure of Bi(110) ultra-thin films grown on Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B surfaces, Y. Shimokawa, T. Fujiwara, K. Nagase, S. Yamazaki, Y. Watanabe, M. Nakatake, K. Mase, K. Takahashi, K. Nakatsuji, H. Hirayama, The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8) (国際学会), 2017
14. Interaction of Image-Potential States with Quantum-Well State in Ultra-thin Ag(111) films on Si(111) $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -B substrate, K. Sugawara, K. Nagase, S. Yamazaki, K. Nakatsuji, H. Hirayama, The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8) (国際学会), 2017
15. Interacting Si atom switches induced by AFM and STM, S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek and S. Morita, Non-Contact Atomic Force Microscopy 2017 (国際学会), 2017
16. 走査型プローブ顕微鏡を応用した原子スケールの電気伝導と原子スイッチ、山崎詩郎、横浜国立大学セミナー招待講演 (招待講演)、2017
17. Interacting Si atom switches induced by force and current, S. Yamazaki, K. Maeda,

Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek and S. Morita, 24th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (国際学会), 2017

18. Interaction between adjacent twin Si4 atom switches, S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, L. Rodrigo, R. Perez, P. Mutombo, P. Jelinek and S. Morita, 13th Conference on Atomically Controlled Surface, Interface and Nanotechnology (国際学会), 2016
19. 走査トンネル顕微鏡による表面電子定在波の観測、山崎詩郎、日本顕微鏡学会 様々なイメージング技術研究部会 第4回研究会 (招待講演), 2016

[図書] (計 1 件)

1. 独楽の科学 ～回転する物体はなぜ倒れないのか?～  
(講談社ブルーバックス)、山崎詩郎、253p、2018

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

<http://www.materia.titech.ac.jp/~hirayama/2009hirayamalabHP/>

## 6. 研究組織

(1) 研究分担者 なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名:

菅原喜周、長瀬謙太郎、吉池雄作、高木優香、田尻寛男、中辻寛、平山博之  
前田圭亮、岩田孝太、杉本宜昭、阿部真之、P. Pou, R. Perez, P. Jelinek、森田清三

ローマ字氏名:

K. Sugawara, K. Nagase, Y. Yoshiike, Y. Takagi, H. Tajiri, K. Nakatsuji, H. Hirayama  
K. Maeda, K. Iwata, Y. Sugimoto, M. Abe, P. Pou, R. Perez, P. Jelinek, S. Morita

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。