

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20710075

研究課題名（和文） 原子スケールの構造揺らぎと光誘起相転移ダイナミクス

研究課題名（英文） Atomic-scale structural fluctuation and dynamics of photo-induced phase transition

研究代表者

寺田 康彦 (TERADA YASUHIKO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・助教

研究者番号：20400640

研究成果の概要（和文）：本研究では、レーザ照射と走査トンネル顕微鏡(STM)法を組み合わせることにより、原子スケールの構造ゆらぎと光誘起金属-絶縁体相転移との関係を局所的かつ動的に調べた。Si(111)表面上に作成したインジウム(In)ナノワイヤー系について、レーザ照射によって相転移が誘起されることを発見した。この相転移の発現機構として、Si基板のバンドが表面付近で湾曲しているために、基板から最表面 In 層に電荷が注入されて、In 系の電子状態が変化して転移が誘起されるというモデルを提唱した。また、フェムト秒パルスレーザを用いた時間分解 STM 法を用いて相転移の動的挙動を調べた。その結果、相転移の速度は、バンド湾曲の緩和の速度によって決まることが明らかになった。さらに、探針-試料間電圧を変えることで、局所的に相転移を制御できることを明らかにした。本研究で明らかになった相転移現象および制御法は、これまで報告例がなく、全く新しい機構に基づくものである。この方法は、可逆的かつ高いスイッチング速度での相転移制御を可能とし、また、他の低次元金属/半導体基板系にも適用できるなど、幅広い応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：The reversible control of metal insulator transition(MIT) in In/Si(111) nanowires is demonstrated by tuning the band filling of the one-dimensional surface state by optical doping. The control of MIT is carried out by regulating the Fermi level in the surface state around the half-filled position, depending on the carrier density introduced at the interface. We successfully achieved the reversible and active control of MIT via the charge doping by regulating the intensity of photoexcitation and electrical field. The dynamical behavior is investigated by femtosecond time-resolved STM. This method is widely applicable to other low-dimensional systems and makes MIT more controllable and suitable for use in nanowires as an active element in future architectures of nanosized functional devices as well as nanoscale interdevice wiring.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2009年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,270,000

研究分野：走査プローブ顕微鏡

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学、ナノ構造科学

キーワード：光誘起相転移、構造ゆらぎ、走査プローブ顕微鏡、表面・界面物性、金属-絶縁体転移

### 1. 研究開始当初の背景

現実の結晶には格子欠陥や不純物などの構造ゆらぎが存在する。相転移は、原子、分子などミクロの構成要素の相互作用による協力現象であるため、そのような構造ゆらぎの影響を大きく受ける。例えば Si(111) 面上の一次元金属 In ナノワイヤー系では、室温で出現する金属相のマトリックスの中に、欠陥にピン止めされた CDW 状態（絶縁体相）が出現することが報告されている。このような局所的な相状態が、マクロな相転移に大きく影響を及ぼすため、局所的な構造ゆらぎと相状態・相転移との関係を探ることが大変重要である。この研究には走査トンネル顕微鏡法 (STM) が最適なツールであるが、それは局所相分離した電子状態を、走査トンネル分光法によって原子レベルで区別することができるためである。

### 2. 研究の目的

本研究では、レーザ照射と STM を組み合わせることにより、欠陥などの原子スケールの構造ゆらぎと光誘起相転移との関係を局所的かつ動的に調べることを目的とする。光を照射する方法は、(i) 光変調 STM 法と (ii) フェムト秒時間分解 STM 法である。本研究では、前者を使って相状態を可逆的かつ自在にスイッチし、相転移の微視的な情報を得る。また、後者の手法に基づいて、フェムト秒オーダーのパルス幅をもつ超短パルス対を用いることにより、相転移の時間分解測定を行う。さらに、STM の探針を用いて、相転移の局所制御を試みる。

そこでまず、代表的な表面相転移系である In/Si(111) 系を対象とし、光誘起相転移を示すかどうか検証する。さらに、光変調 STM 法により構造ゆらぎと相転移の関係を調べる。次にフェムト秒時間分解 STM 法を用いて、相転移のダイナミクスを調べる。

### 3. 研究の方法

In/Si(111) 試料は、超高真空槽内で 700K に保った Si(111) (n 型、 $0.001 \Omega \text{cm}$ ) 清浄表面上に、インジウムを蒸着して作成した。STM 装置はオミクロン社製の温度可変 STM を用いた。STM の探針にはタングステン探針を用いた。光変調 STM 法では、レーザダイオード (波長 635nm、強度 1mW) からのビームをレンズで直径 0.02 ミクロンの範囲にフォーカスし、

周期的にオンオフして試料を明・暗状態にししながら、電流-電圧 (I-V) カーブを測定した。

### 4. 研究成果

まず、In/Si(111) 面の特徴を調べた。図 1a は、温度 61K、暗状態での STM 像である。4x1 相が現れており、I-V カーブ (図 1c) からこの相領域は金属状態であることがわかる。この系の相転移温度  $T_c$  は 121K であり、その温度以下では絶縁体相であると報告されていたが、図 1a は、この相転移温度以下でも系が金属状態であることを示している。

そこでさらに系を冷却し、47K での STM 像 (図 1b) をみると、8x2 相が支配的になり、系が絶縁体状態であることがわかった。それぞれの相の面積を温度に対してプロットすることにより (図 1d)、この系の  $T_c$  が 47K であることがわかる。

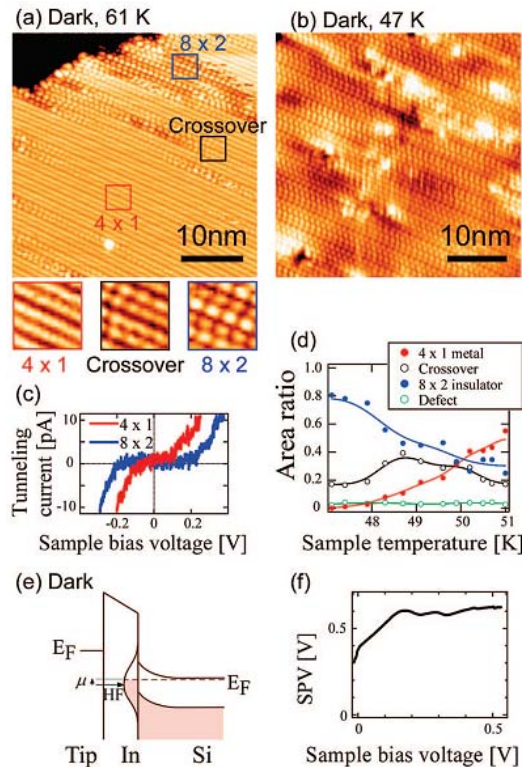


図 1 暗状態での In/Si(111) 表面の STM 像 (a) 61K、(b) 47K。 (c) I-V カーブ。 (d) 相面積の温度依存性。 (e) バンドモデル図。 (f) SPV の電圧依存性。

この  $T_c$  の低下の起源として、In のバンド構造のフェルミ準位が、ハーフフィルド(HF)位置からずれることが挙げられる。Si 基板のバンドベンディングにより、基板から In 層へと電子が注入されて、In バンドは負に帯電している。この帯電効果によって、In バンドは HF 状態からずれて  $T_c$  が低下し、In は金属的になる (図 1e)。このモデルを確認するため、光変調 STM 法で表面光起電力 (SPV) を測定し、バンド構造を調べた (図 1f)。電圧がゼロのところでは SPV は正の値になっており、これは Si 基板のバンドベンディングが上向きであることを示している。このことから、上記のモデルの妥当性が検証できた。

次に、相転移を制御する新しい方法として、光ドーピングを提唱した。光照射を行うことで光キャリアを生成し、In バンド内の電荷を打ち消して  $T_c$  の値が上昇するため、系を絶縁体化させることができる (図 2)。明状態での STM 像 (図 2a) をみるとほとんどが  $8 \times 2$  相になっており、絶縁体化が起こっていることが確認できた。

さらにこの光ドーピングの効果を定量的に調べるため、それぞれの相の面積の光強度依存性を測定した (図 3)。図 3 により、ある光強度を境にして急峻に相転移が起こっており、光誘起相転移の制御性が高いことを示している。

前述のモデルによれば、相転移の速度は、

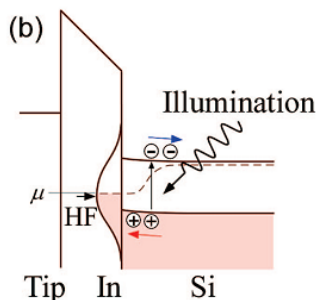
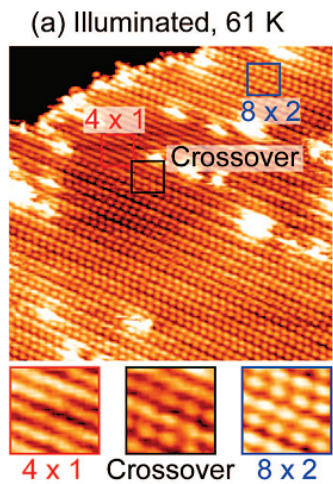


図 2 (a)明状態での STM 像。(b)バンド図。

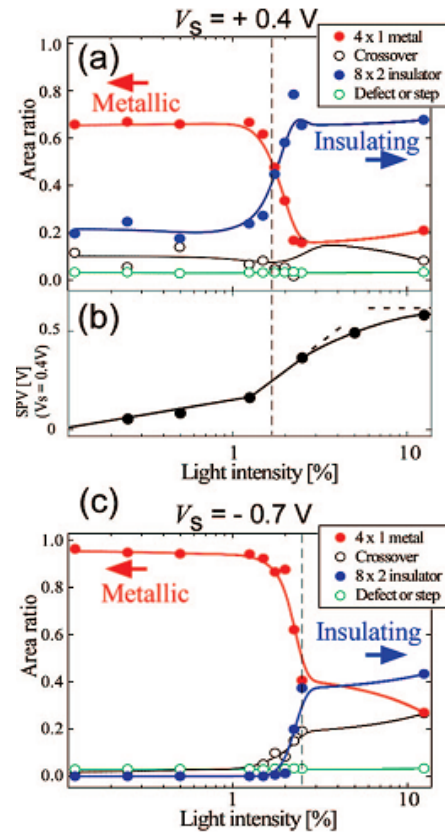


図 3 相面積の光強度依存性 (a)+0.4V、(c) $V_s=-0.7V$ 。(b)SPV の光強度依存性。

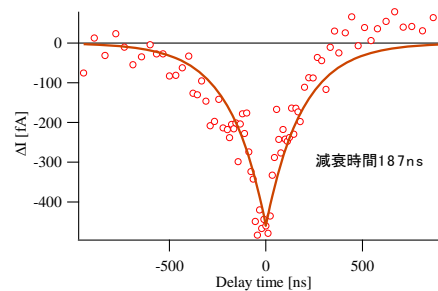


図 4 時間分解トンネル電流の遅延時間依存性。

バンド湾曲の緩和の速度によって決まることが予想される。これを確認するため、フェムト秒パルスレーザを用いた時間分解 STM を用いて相転移の動的挙動を調べた。その結果 (図 4)、時間分解 STM トンネル電流が、バンド湾曲の緩和時間と同程度の時定数 (187ns) で時間変化しており、モデルの正し



さを示していた。

次に、相転移の局所制御の可能性を探った。図3の(a)(c)を比較すると、相転移が起こる光強度の閾値は、試料電圧によって異なっており、負の電圧の場合の方が高いことがわかる。この相違は、電圧依存バンドベンディングが原因であるが、この結果は、電圧を変えることによって相転移を制御できることを示している。

これを確認するため、試料電圧を負バイアスにしたときのSTM像を観察した(図5a)。この図によれば、 $V_s > 0$ の場合(図1a)と比べて4x1相が支配的であり、相がより金属的であることがわかった。また、相面積比を $V_s$ の関数としてプロットすると(図5b)、確かに試料電圧に依存して相が変化することが確認できた。探針-試料間電圧はナノスケール程度の局所領域内に印加することができるため、相転移の局所制御が可能である。

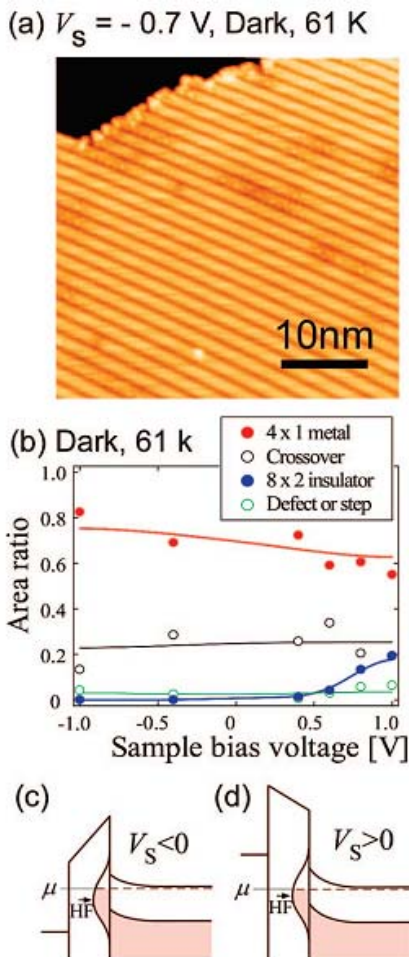


図5 (a)暗状態、61K、 $V_s = -0.7$ VのSTM像。(b)相面積の $V_s$ 依存性。(c)(d)バンド構造。

本研究で明らかになった相転移現象および制御法は、これまで報告例がなく、全く新しい機構に基づくものである。この方法は、可逆的かつ高いスイッチング速度での相転移制御を可能とし、また、他の低次元金属/半導体基板系にも適用できるなど、幅広い応用が期待できる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

① Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa, Laser-combined STM for probing ultrafast transient dynamics, Journal of Physics: Condensed Matter、査読有、印刷中(2010)

② Yasuhiko Terada, Noriaki Takeuchi, Shoji Yoshida, Atsushi Taninaka, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa, Effect of defects buried in pentacene/alkanethiol self-assembled monolayer/Au film on its electronic properties visualized by scanning tunneling microscopy/spectroscopy, Jpn. J. Appl. Phys.、査読有、印刷中(2010)

③ Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Atsushi Okubo, Ken Kanazawa, Maojie Xu, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa, Optical doping: active control of metal-insulator transition in nanowire, Nano Lett. 査読有、8 (11), 3577-3581(2008)

[学会発表] (計9件)

① 寺田康彦、吉田昭二、武内修、重川秀実、レーザー励起STMによる局所分光、シンポジウム：ナノスケール分光法による顕微評価・解析技術の最前線、第57回応用物理学関係連合講演会、2010.3.17-20、東海大学湘南キャンパス

② Yasuhiko Terada, Osamu Takeuchi and Hidemi Shigekawa, Femtosecond time-resolved scanning tunneling microscopy、理研シンポジウム/RIKEN Symposium 第1回ナノ分光部会シンポジウム、2009.11.6、理化学研究所

③ Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Munenori Yokota, Atsushi Okubo, Osamu Takeuchi, Hidemi Shigekawa, Nanoscale visualization of carrier dynamics in semiconductors by femtosecond time-resolved STM、11th International

Conference on Electronic Spectroscopy and Structure(ICESS-11)、2009. 10.6、奈良県新公会堂

④寺田康彦、吉田昭二、大久保淳史、横田統徳、武内修、重川秀実、時間分解 STM 信号の物理起源と空間分解能、第 70 回応用物理学会学術講演会、2009. 9.8-11、富山大学

⑤寺田康彦、吉田昭二、重川秀実、フェトム秒時間分解走査プローブ顕微鏡技術の開拓と極限計測 —極微世界の高速現象をプローブ顕微鏡で探る—、第 47 回 2009 分析展、2009. 9.2-4、幕張メッセ国際展示場

⑥Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Atsushi Okubo, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa, Novel control of metal-insulator transition in nanowire by optical doping, The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy(ICSPM16)、2008. 12.11-13、Atagawa Heights, Shizuoka

⑦Atsushi Okubo, Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Maojie Xu, Osamu Takeuchi, Hidemi Shigekawa, Optical Control of Metal-Insulator Phase Transition in In/Si(111) Nanowire、表面科学とナノテクノロジーに関する国際シンポジウム(ISSS-5)、2008. 11.9-13、早稲田大学国際会議場

⑧Yasuhiko Terada, Shoji Yoshida, Atsushi Okubo, Maojie Xu, Osamu Takeuchi, and Hidemi Shigekawa, Optical control of metal-insulator transition in nanowire、第 4 回真空・表面科学アジア・オーストラリア会議(VASSCAA-4)、2008. 10.28-31、くにびきメッセ

⑨大久保淳史、寺田康彦、吉田昭二、武内修、重川秀実、In/Si(111)ナノワイヤー金属絶縁体転移の光制御、第 69 回応用物理学会学術講演会、2008. 9.2-5、中部大学

[その他]

ホームページ等

<http://dora.bk.tsukuba.ac.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

寺田 康彦 (TERADA YASUHIKO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・助教

研究者番号：20400640