

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年3月31日現在

機関番号：11301  
 研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2009～2011  
 課題番号：21760022  
 研究課題名（和文） スピン偏極 LEEM による磁性分子の薄膜成長過程に関する研究  
 研究課題名（英文） Growth dynamics study of magnetic molecules by using a spin-polarized LEEM  
 研究代表者  
 劉 虹ウエン (LIU HONGWEN)  
 東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教  
 研究者番号：30420417

研究成果の概要（和文）：

トポロジカル絶縁体フィルム ( $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ) の Si(111)-7x7 での成長ダイナミクスについて LEEM を用いて調べた。分子線エピタキシー成長での最適パラメータを見出した。また  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  フィルムに関する高分解能 TEM 結果と伝導特性は、実空間におけるフィルム-基板間の界面構造の存在および絶縁体-金属変調を示唆していた。

研究成果の概要（英文）：

The growth dynamics of the topological insulator (TI,  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ) films at Si(111)-7x7 has been investigated by using a LEEM. The optimized parameters for MBE growth have been found. The HRTEM results and the transport properties of as-grown  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  films further indicated the interface structure between the film/substrate in real space and insulating-metallic modulation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎，薄膜・表面界面物性

キーワード：薄膜

1. 研究開始当初の背景

磁性材料は、スピンエレクトロニクス、量子情報転送技術への応用に向けて、大きな

潜在能力を有している。しかしながら、構造と磁気性質との相関は極めて複雑である。低

エネルギー電子顕微鏡 (LEEM) は基板上に成長中の薄膜構造を明らかにする上で、非常に重要である。ナローギャップ半導体 ( $\text{Sb}_2\text{Te}_3$ 、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ 、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ) は、これまで熱電変換素子材料として用いられてきた。最近になって、これらの材料が新しい量子状態である 3次元トポロジカル絶縁体であることが明らかになった。この 3次元トポロジカル絶縁体は、バルクの絶縁性ギャップと Dirac コーン状の電子伝導表面性を持っており、磁性モノポールと Majorana フェルミノンのような他の物理諸性質との関係に注目が集まっている。現在のところ、3次元トポロジカル絶縁体を示す材料は、主に融体成長によってバルク状で作製されている。しかしながら、試料作製段階で導入されるドーパントが阻害要因となり、伝導特性が低下し、デバイス特性が下がる。また、薄膜上の 3次元トポロジカル絶縁体の取り組みもほとんどなされていない。したがって高品質の 3次元トポロジカル絶縁体を作製するために、特に基板と薄膜界面における成長のダイナミクスを調査することは重要である。

## 2. 研究の目的

本研究計画は、LEEM を利用し、ユニークな磁気特性を兼ね備えた  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  のようなナローギャップ半導体をターゲットに研究を進めていく。

## 3. 研究の方法

1. 成膜条件を最適化し、高品質な 3次元トポロジカル絶縁体を作製する。成膜特性は、LEED 回折パターン、電気伝導特性によって評価する。
2. 薄膜を AFM、ラマン分光、HRTEM によって評価する。

## 4. 研究成果

1. LEEM を用いて調べたエピタキシャル  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  超薄膜の成長ダイナミクスは、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  単結晶の形成が湿潤層と Te/Bi 終端の Si (111)- $1\times 1$  再構成を経て起こることを示した。また、その湿潤層により Si (111)- $7\times 7$  と  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の間の 14% の格子ミスフィットを調整することが可能であることがわかった。これにより、フィルムが  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  [111] 方向へ沿って、quintuple layer-by-quintuple layer モードで成長できることが示唆される。
2. 製膜後試料の伝導度測定により、トポロジカル絶縁体超薄膜 ( $\sim 5$  nm) の絶縁体的挙動が示された。超薄膜  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  の温度依存抵抗において、電子状態の変調と半導体的電気伝導 ( $dR_{xx}/dT < 0$ ) から金属的伝導 ( $dR_{xx}/dT > 0$ ) への相転移が観測された。
3. 高分解能 TEM の結果は、2nm 厚さの湿潤層の存在を直接示すものであり、このことは ARPES の結果を支持している。

## 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 12 件)

1. R. Nishitani, H. W. Liu, and H. Iwasaki, Comparison of scanning tunneling microscope-light emission and photoluminescence from porphyrin films using ultra-high vacuum scanning tunneling microscopy, *Appl. Phys. Lett.* 100, 051102(4) (2012) (IF=3.820)  
査読有
2. Y. H. Liu, T. Fujita, A. Hirata, S. Li, H. W. Liu, W. Zhang, A. Inoue, and M. W. Chen, Deposition of multicomponent

- metallic glass films by single-target magnetron sputtering, *Intermetallics* 21, 105-114 (2012) (IF=2.327) 查読有
3. H.W. Liu, L. Zhang, X.Y. Lang, Y. Yamaguchi, H. Iwasaki, Y. Inouye, Q.K. Xue, and M.W. Chen, Single molecule detection from a large-scale SERS-active Au<sub>79</sub>Ag<sub>21</sub> substrate, *Sci. Rep.* 1, 112 (2011) 查読有
  4. L. Zhang, L.Y. Chen, H.W. Liu, Y. Hou, A. Hirata, T. Fujita, and M.W. Chen, Effect of residual silver on surface-enhanced Raman scattering of dealloyed nanoporous gold, *J. Phys. Chem. C* 115, 19583-19587 (2011) (IF=4.520) 查読有
  5. H.T. Yuan, H.W. Liu, H. Shimotani, H. Guo, M.W. Chen, Q.K. Xue, and Y. Iwasa, Liquid-gated ambipolar transport in ultrathin films of a topological insulator Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>, *Nano Letters* 11, 2601-2605 (2011) (IF=12.186) 查読有
  6. H.W. Liu, H.T. Yuan, N. Fukui, L. Zhang, J.F. Jia, Y. Iwasa, M.W. Chen, T. Hashizume, T. Sakurai, and Q. K. Xue, Growth of topological insulator Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> ultrathin films on Si(111) investigated by low-energy electron microscopy, *Crystal Growth & Design* 10, 4491-4493 (2010) (IF=4.162) 查読有
  7. D. Pan, H.W. Liu, T. Fujita, A. Hirata, A. Inoue, T. Sakurai, and M.W. Chen, Deformation-induced change in the structure of metallic glasses during multi-step indentation, *Phys. Rev. B* 81, 132201(4) (2010) 查読有
  8. H.W. Liu, A. Al-Mahboob, Y. Fujikawa, N. Fukui, T. Hashizume, T. Hitosugi, Q.K. Xue, T. Sakurai, Pentacene growth on graphite investigated by low-energy electron microscope, *J. Crystal Growth* 312, 967-970 (2010) 查読有
  9. T.Z. Han, H.W. Liu, K. Sudoh, R. Nishitani, H. Iwasaki, Anomalous Enhancement of STM-excited light emission from gold films on HOPG substrate, *Jpn. J. Appl. Phys.* 48, 115002(5) (2009) 查読有
  10. R. Nishitani, H.W. Liu, H. Iwasaki, Plasmon-enhancement and nano-cavity effects in STM light emission from organic films on noble metals, *Hyomen Kagaku*, 30 (9), 491-498 (2009) 查読有
  11. R. Nishitani, H.W. Liu, H. Iwasaki, Calculation of Plasmon Enhanced Molecular Fluorescence in STM Tunneling in terms of Effective Media for Molecules on Metal Substrate, *J. Vac. Sci. Technol. B* 27 (2), 993-996 (2009) 查読有
  12. H.W. Liu, R. Nishitani, T.Z. Han, Y. Ie, Y. Aso, H. Iwasaki, STM fluorescence of porphyrin enhanced by a strong plasmonic field and its nanoscale confinement in an STM cavity, *Phys. Rev. B* 79 (12), 125415 (6) (2009) 查読有

[学会発表] (計9件)

1. H.W. Liu, T. Fujita, R. Nishitani, W. Li, X.Y. Lang, L. Zhang, Q.K. Xue, and M.W. Chen, “Inelastic electron tunneling spectroscopy of nanoporous gold film”, International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T2012), Paris, France, July 23-27, 2012 (poster)
2. H.W. Liu, “Single molecule detection from a large-scale SERS-active gold-based substrate”, The 2012 WPI-AIMR Annual Workshop, Sendai, Japan, Feb. 20-23, 2012 (Invited)
3. H.W. Liu, “Initial Growth of Topological Insulator  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  Ultrathin Films on Si(111) Investigated by Low-Energy Electron Microscopy”, 2011 LEEM Workshop in Chongqing University, Chongqing, China, Nov. 27, 2011 (invited)
4. H.W. Liu, L. Zhang, Y. Yamaguchi, H. Iwasaki, Y. Inouye, Q.K. Xue, and M.W. Chen, Surface enhanced Raman scattering detection of single R6G molecules on nanoporous gold films, APS March Meeting, Dallas, Texas, March 21 - 25, 2011 (oral)
5. H.W. Liu, H. T. Yuan, N. Fukui, L. Zhang, Y. Iwasa, T. Hitosugi, M. W. Chen, T. Hashizume, and Q. K. Xue, “Interface engineering of ultrathin topological insulator  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  films on Si(111) substrate investigated by low-energy electron microscopy”, The 6<sup>th</sup> International Workshop on Nano-scale

Spectroscopy and Nanotechnology, Kobe, Japan, Oct. 25-29, 2010 (oral)

6. H.W. Liu, N. Fukui, H. T. Yuan, L. Zhang, Y. Iwasa, T. Hitosugi, M. W. Chen, T. Hashizume, and Q. K. Xue, “Growth of topological insulator  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  ultrathin films on Si(111) investigated by LEEM”, International LEEM/PEEM7 Conference, NY, USA, Aug. 8-13, 2010 (poster)
7. H.W. Liu, N. Fukui, L. Zhang, J.F. Jia, M.W. Chen, T. Hashizume, T. Sakurai, and Q.K. Xue, “Real time growth of bismuth teluride thin films investigated by LEEM”, APS March Meeting, Portland, OR, March 15 - 19, 2010 (oral)
8. H.W. Liu, A. Al-Mahboob, Y. Fujikawa, N. Fukui, T. Hitosugi, T. Hashizume, Q.K. Xue, T. Sakurai, “LEEM studies of pentacene growth on graphite”, Symposium on Surface and Nano Science 2010 (SSNS' 10), Shizukuishi, Japan, Jan. 15-18, 2010 (poster)
9. H.W. Liu, R. Nishitani, T.Z. Han, Q.K. Xue, H. Iwasaki, Plasmonic Scanning Tunneling Microscope-Induced Molecular Fluorescence, 2009 WPI-AIMR Annual Workshop, Tohoku University, March 1-6, 2009, Zao, Miyagi, Japan (invited)

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

〔その他〕  
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

劉 虹ウェン (LIU HONGWEN)  
東北大学・原子分子材料科学高等研究機  
構・助教  
研究者番号：30420417

(2) 研究分担者

なし