

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600015

研究課題名(和文) 水平力顕微鏡による単一原子の同位体の識別法の開発

研究課題名(英文) Isotope identification of single atoms by lateral force microscopy

研究代表者

杉本 宜昭 (Sugimoto, Yoshiaki)

東京大学・新領域創成科学研究科・准教授

研究者番号：00432518

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：原子間力顕微鏡(AFM)を用いると探針先端の原子と表面の個々の原子との間に働く相互作用力を測定して、表面の原子や分子を観察できる。さらに、2原子間に働く相互作用力や散逸エネルギーを測定することも可能である。AFMを用いて、化学的性質が似通っているシリコン原子とゲルマニウム原子の元素同定に成功した。これによって、高感度なレーザー干渉計により精密な力測定ができることが示された。

研究成果の概要(英文)：Atomic force microscopy (AFM) allows us to observe single atoms and molecules on surfaces by measuring interaction force between tip apex atoms and individual surface atoms. Using AFM, we can also measure energy dissipation as well as interatomic forces. We successfully identify silicon atoms and germanium atoms, which have similar chemical characters. It demonstrates that interatomic interaction can be precisely measured by our laser interferometer.

研究分野：走査型プローブ顕微鏡

キーワード：走査型プローブ顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

近年、原子間力顕微鏡 (AFM) の発展は目覚ましい。AFM は、鋭い探針を試料表面でスキャンさせ、探針にかかる微弱な力を測定することによって、表面の原子を観察する顕微鏡である。AFM を用いると、探針先端の 1 つの原子と表面の 1 つの原子との間の 1 対 1 の化学結合力を精密に測定できる。我々は、これを応用して、化学結合力測定に基づく元素同定法を提案し、半導体表面で、Si, Sn, Pb の個々の原子を元素同定できることを実証した。様々な原子に適用できる元素同定法の開発は、現在も進行中であるが、これをさらに一歩進めた技術に、同位体の識別がある。これが実現すれば、同位体マークされた分子を使って、化学反応を追跡する同位体ラベル法を単分子レベルで行うことができる。

2. 研究の目的

本研究では、様々な環境におかれた水素 (H) と重水素 (D) を同位体識別することを目的とする。高感度な水平力顕微鏡を開発し、探針を表面に対して水平に振動させ、両者を識別する。まず、Si 表面に吸着した H 原子と D 原子を識別し、測定原理を検証する。そして、重水などの、D 原子を含む分子を二酸化チタン表面で解離吸着させて、その結果生じた D 原子と、自然に吸着している H 原子とを識別して、単一分子の同位体ラベル法のモデル実験を行う。さらに、同位体でマークした有機分子中の H 原子と D 原子の識別も目指す。

3. 研究の方法

まず、高感度な水平力顕微鏡を開発する。そして、Si(111)表面を観察しながら、H 原子と D 原子をその場吸着させて、実験的に両者を区別する。その状態で、H 原子と D 原子上で、水平力を精密に測定する。両者で信号の強度を比較して、同位体識別法の原理を検証する。また、同位体の識別法が、化学反応の同位体ラベル法に応用できることを示す。具体的には、重水など、D 原子でマークした分子を二酸化チタン表面に解離吸着させて、解離吸着した結果生じた D 原子と、自然に吸着している H 原子とを区別して、追跡する。また、同位体でマークした有機分子そのものを可視化して、その中に含まれる H 原子と D 原子を識別する。

4. 研究成果

(1) 水平力顕微鏡の開発

カンチレバーに取り付けられた探針を表面に対して水平方向に振動させる水平力顕微鏡を開発した。超高真空中で、高い Q 値をもつ安定な水平振動を確認することができた。また、AFM 観察により原子分解能が得られることを確認した。

(2) Si 原子と Ge 原子の識別

IV 族半導体元素のなかでも Si と Ge は化学

的性質が非常に似ており混晶を形成することが知られている。また、 $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ は組成比に応じて格子定数やバンドギャップを連続的に変化されるうえ、様々なナノ構造(ナノクラスター、ナノアイランドなど)を形成するため、次世代半導体材料として非常に注目されている。Si と Ge 原子の分布はデバイスの動作性能に関わるため元素分析は重要であるが、これらが相互拡散によって混在した表面では走査トンネル顕微鏡や AFM による通常のトポグラフ観察では Si と Ge 原子を識別することは大変難しい。そこで、本研究では Ge/Si(111)-7×7 上で Si と Ge 原子の識別を試みた。その結果、化学的に活性な AFM 探針を用いることで、これら化学的に似た元素の識別が可能であることが明らかとなった。また、濡れ層である Ge/Si(111)-5×5 上においても本元素識別法が適用でき、最表面の Ge 層の中に微量の Si 原子が存在することが判明した。Si と Ge 原子の識別法は、今後、同位体の識別にも応用されると期待できる。

(3) 二酸化チタン表面上の水素原子の観察

同位体の識別の準備として、二酸化チタン表面上に吸着した水素原子の AFM 観察と評価を行った。(110)と(011)の 2 つの結晶方位の表面上で明確に水素原子を確認することができた。

(4) 有機分子の超高分解能観察

有機分子の超高分解能観察を室温で行った。従来極低温環境の AFM でのみ分子骨格を解像することができるとされていたが、有機分子を基板に化学吸着させれば、室温においても同様の分解能が得られることがわかった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 8 件)

1. A. Yurtsever, Jo Onoda, T. Iimori, K. Niki, T. Miyamachi, M. Abe, S. Mizuno, S. Tanaka, F. Komori, and Y. Sugimoto: 'Effects of Pb intercalation on the structural and electronic properties of epitaxial graphene on SiC' Small (2016) in press 査読有

2. E. Inami, and Y. Sugimoto: 'Combined atomic force microscopy and voltage pulse technique to accurately measure electrostatic force' Japanese Journal of Applied Physics (2016) in press 査読有

3. Y. Sugimoto: 'Atomic Force Microscopy for Imaging, Identification and Manipulation of Single Atoms' e-Journal of Surface Science and Nanotechnology vol. 14 (2016) pp. 28-34 査読有 <http://doi.org/10.1380/ejsnt.2016.28>

4. A. Yurtsever, J. Onoda, M. Abe, C.L. Pang, Y. Sugimoto: 'Imaging the TiO₂(011)-(2x1) Surface using Noncontact Atomic Force Microscopy and Scanning Tunneling Microscopy' The Journal of Physical Chemistry C vol. 120 (2016) pp. 3390-3395, issue6 査読有

<http://dx.doi.org/10.1021/acs.jpcc.5b11703>

5. J. Onoda, K. Niki, and Y. Sugimoto: 'Identification of Si and Ge atoms by atomic force microscopy' *Physical Review B* vol. 92 (2015) pp. 155309 1-6, issue15 査読有
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.155309>
6. K. Iwata, S. Yamazaki, P. Mutombo, P. Hapala, M. Ondracek, P. Jelinek, and Y. Sugimoto: 'Chemical structure imaging of a single molecule by atomic force microscopy at room temperature' *Nature Communications* vol. 6 (2015) pp. 7766 1-7 査読有
<http://dx.doi.org/10.1038/ncomms8766>
7. E. Inami, and Y. Sugimoto: 'Accurate extraction of electrostatic force by a voltage-pulse force spectroscopy' *Physical Review Letters* vol. 114 (2015) pp. 246102 1-5, issue24, Featured in Physics, Focus Stories 査読有
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.246102>
8. S. Yamazaki, K. Maeda, Y. Sugimoto, M. Abe, V. Zobac, P. Pou, L. Rodrigo, P. Mutombo, R. Perez, P. Jelinek, and S. Morita: 'Interplay between switching driven by the tunneling current and atomic force of a bistable four-atom Si quantum dot' *Nano Letters* vol. 15 (2015) pp. 4356-4363 査読有
<http://dx.doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b00448>

〔学会発表〕(計 35 件)

- (1) 岩田孝太、山崎詩郎、Pingo Mutombo、Prokop Hapala、Martin Ondracek、Pavel Jelinek、杉本宜昭
 「AFM による有機分子の高分解能室温観察」
 第 63 回応用物理学会 春季学術講演会
 2016 年 3 月 19-22 日
 東京工業大学 大岡山キャンパス
- (2) 小野田穰、Chi Lun Pang、Ayhan Yurtsever、杉本宜昭
 「TiO₂(110) 表面上の帯電領域の NC-AFM/KPFM 観察」
 第 63 回応用物理学会 春季学術講演会
 2016 年 3 月 19-22 日
 東京工業大学 大岡山キャンパス
- (3) 小野田穰、仁木康平、杉本宜昭
 「非接触原子間力顕微鏡を用いた Si と Ge 原子の識別」
 第 63 回応用物理学会 春季学術講演会
 2016 年 3 月 19-22 日
 東京工業大学 大岡山キャンパス
- (4) 杉本宜昭
 「超高真空原子間力顕微鏡を用いた超高解像計測」
 ニューガラスフォーラム 評価技術研究会
 2016 年 1 月 29 日
 日本ガラス工業センター、東京都新宿区
- (5) E. Inami, I. Hamada, K. Ueda, M. Abe, S. Morita and Y. Sugimoto
 "Chiral Switch Operated at Room Temperature"
 23th International Colloquium on Scanning

- Probe Microscopy (ICSPM23)
 December 10th-12th, 2015, Hilton Niseko Villege, Niseko, Japan, 20:00-22:00 poster, Thursday December 10th, 2015, S4-48
- (6) K. Iwata, S. Yamazaki, P. Mutombo, P. Hapala, M. Ondracek, P. Jelinek and Y. Sugimoto
 "Imaging the Chemical Structure of Single Molecule by Atomic Force Microscopy at Room Temperature"
 23th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM23)
 December 10th-12th, 2015, Hilton Niseko Villege, Niseko, Japan, 10:10-10:25 Oral, Saturday December 12th, 2015, S9-5
- (7) 稲見栄一、濱田幾太郎、上田啓市、阿部真之、森田清三、杉本宜昭
 「走査型プローブ顕微鏡による原子スイッチの組立」
 2015 年真空・表面科学合同講演会
 2015 年 12 月 1-3 日
 つくば国際会議場、茨城県つくば市
 2 日口頭発表 2Hp08
- (8) 小野田穰, PangChi Lun, YurtseverAyhan, 杉本宜昭
 「NC-AFM/KPFM を用いた TiO₂ (110) 表面上の帯電領域の観察」
 2015 年真空・表面科学合同講演会
 2015 年 12 月 1-3 日
 つくば国際会議場、茨城県つくば市
 2 日ポスター発表 2P20
- (9) 小野田穰, 仁木康平, 杉本宜昭
 「SiGe 混晶表面での非接触原子間力顕微鏡による元素識別」
 2015 年真空・表面科学合同講演会
 2015 年 12 月 1-3 日
 つくば国際会議場、茨城県つくば市
 1 日口頭発表 1Da05R
- (10) J. Onoda, K. Niki and Y. Sugimoto
 "Identification of Individual Si and Ge Atoms by AFM"
 10th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '15 (ALC '15)
 October 25th-30th, 2015, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, 11:30-11:50 Oral, Friday October 30th, 2015, 30a-A-6
- (11) 小野田穰, 仁木康平, 杉本宜昭
 「原子間力顕微鏡を用いた Ge/Si 混在表面での元素識別」
 日本物理学会 2015 年秋季大会
 2015 年 9 月 16-19 日
 関西大学 千里山キャンパス
- (12) K. Iwata, S. Yamazaki, P. Mutombo, P. Hapala, M. Ondráček, P. Jelinek and Y. Sugimoto
 "Single Molecule on Si(111)-(7x7) Imaged by AFM at Room Temperature"
 18th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (nc-AFM 2015)
 September 7th-11th, 2015, Cassis Convention Center "Oustau Calendal", Cassis, France,

18:00-20:00 Poster, Wednesday September 9th, 2015, P-Wed-16
(13) J. Onoda, C. L. Pang, A. Yurtsever and Y. Sugimoto
“Exclusion of H atoms at the subsurface charged regions on TiO₂(110)”
18th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (nc-AFM 2015)
September 7th-11th, 2015, Cassis Convention Center “Oustau Calendal”, Cassis, France,
18:00-20:00 Poster, Wednesday September 9th, 2015, P-Wed-46
(14) J. Onoda, K. Niki and Y. Sugimoto
“Chemical identification on the Si-Ge intermixed surfaces by AFM”
18th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (nc-AFM 2015)
September 7th-11th, 2015, Cassis Convention Center “Oustau Calendal”, Cassis, France,
14:20-14:40 Oral, Monday September 7th, 2015
(15) E. Inami, I. Hamada, K. Ueda, M. Abe, S. Morita and Y. Sugimoto
“Chiral switch operated at room temperature”
International Workshop on Molecular Architectonics(IWMA 2015)
August 3rd-6th, 2015, Shiretoko Grand Hotel “Kita-Kobushi”, Shari, Japan, 12:00-14:00 Poster,
Tuesday August 4th, 2015, PSTR-7
(16) K. Iwata, S. Yamazaki, P. Mutombo, P. Hapala, M. Ondracek, P. Jelinek and Y. Sugimoto
“Structure of Molecule Imaged by Atomic Force Microscopy at Room Temperature”
NIMS Conference 2015
July 14th-16th, 2015, Epochal Tsukuba, Tsukuba, Japan, 17:30-19:30 Poster, Wednesday July 15th, 2015, P040
(17) K. Niki, J. Onoda, and Y. Sugimoto
“Chemical Identification of Si and Ge atoms by AFM force spectroscopy”
NIMS Conference 2015
July 14th-16th, 2015, Epochal Tsukuba, Tsukuba, Japan, 17:30-19:30 Poster, Wednesday July 15th, 2015, P029
(18) J. Onoda, C.L. Pang, A. Yurtsever, Y. Sugimoto, and G. Thornton
“(2n×1) Reconstructions of TiO₂(011) Elucidated by AFM and STM”
NIMS Conference 2015
July 14th-16th, 2015, Epochal Tsukuba, Tsukuba, Japan, 17:30-19:30 Poster, Wednesday July 15th, 2015, P028
(19) E. Inami, I. Hamada, K. Ueda, M. Abe, S. Morita, and Y. Sugimoto
“Atom Switch Assembled by Atom Manipulation”
NIMS Conference 2015
July 14th-16th, 2015, Epochal Tsukuba, Tsukuba, Japan, 17:30-19:30 Poster, Wednesday July 15th, 2015, P027
(20) 稲見栄一、濱田幾太郎、上田啓市、阿部

真之、森田清三、杉本宜昭
「室温で動作する原子スイッチの組立」
2015年度前期 物性研究所 短期研究会
2015年6月24-26日
東京大学 柏キャンパス
(21) 岩田孝太、山崎詩郎、P. Mutombo、P. Hapala、M. Ondráček、P. Jelinek、杉本宜昭
「Si(111)表面上単一有機分子の室温原子間力顕微鏡測定」
2015年度前期 物性研究所 短期研究会
2015年6月24-26日
東京大学 柏キャンパス
(22) 稲見栄一、濱田幾太郎、上田啓市、阿部真之、森田清三、杉本宜昭
「室温で動作する鉛クラスタースイッチの組立」
第62回応用物理学会 春季学術講演会
2015年3月11-14日
東海大学 湘南キャンパス
(23) J. Onoda, M. Ondracek, A. Yurtsever, P. Jelinek, and Y. Sugimoto
“Atomic Force Microscopy Study of Initial and Secondary Oxidation Stages of the Si(111)-(7×7) surface”
22th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM22)
December 11th-13th, 2014, Atagawa, Japan, 14:50-15:05 Oral, Thursday December 11th, 2014, S1-3
(24) J. Onoda, C.L. Pang, A. Yurtsever, Y. Sugimoto, and G. Thornton
“(2n×1) Reconstructions of TiO₂(011) Revealed by Atomic Force Microscopy and Scanning Tunneling Microscopy”
22th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM22)
December 11th-13th, 2014, Atagawa, Japan, 19:30-21:30 Poster, Thursday December 11th, 2014, S4-52
(25) 杉本宜昭
「原子間力顕微鏡を用いた原子操作とエネルギー散逸」
第34回表面科学学術講演会(依頼講演)
2014年11月6-8日
くびきメッセ、松江
7日発表 7Cp04
(26) 岩田孝太、山崎詩郎、杉本宜昭
「原子間力顕微鏡を用いた単一有機分子の室温測定」
第34回表面科学学術講演会
2014年11月6-8日
くびきメッセ、松江
7日発表 7Dp10S
(27) Y. Sugimoto
“Atomic force microscopy for imaging, identification and manipulation of single atoms”
The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7) (Invited)
November 3rd-6th, 2014, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, 13:10-13:50 Oral, Thursday

November 6th, 2014, 6pC1-1
(28) E. Inami, I. Hamada, K. Ueda, M. Abe, S. Morita, and Y. Sugimoto
“Room Temperature Chiral Switch of Nanocluster Created by Atom Manipulation”
The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7)
November 3rd-6th, 2014, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, 11:00-11:20 Oral, Tuesday
November 4th, 2014, 4aA2-3
(29) K. Iwata, S. Yamazaki, and Y. Sugimoto
“Single Organic Molecule Measured by Atomic Force Microscopy at Room Temperature”
The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7)
November 3rd-6th, 2014, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, 10:20-10:40 Oral, Tuesday
November 4th, 2014, 4aD2-2
(30) A. Yurtsever, C.L. Pang, J. Onoda, Y. Sugimoto, and G. Thornton
“Investigation of TiO₂(011) Surface by Noncontact Atomic Force Microscopy and Scanning Tunneling Microscopy”
The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7)
November 3rd-6th, 2014, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, 18:00-20:00 Poster, Tuesday
November 4th, 2014, 4PN-134
(31) Y. Sugimoto, A. Yurtsever, N. Hirayama, M. Abe, and S. Morita
“Atom-by-atom clustering by scanning probe microscopy”
The 7th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS7)
November 3rd-6th, 2014, Kunibiki Messe, Matsue, Japan, 10:00-12:00 Poster, Thursday
November 6th, 2014, 6pN-106
(32) 岩田孝太、山崎詩郎、杉本宜昭
「単一 PTCDA 分子の高分解能室温 AFM 測定」
第 75 回応用物理学会 秋季学術講演会
2014 年 9 月 17-20 日
北海道大学 札幌キャンパス
(33) A. Yurtsever, C.L. Pang, J. Onoda, Y. Sugimoto, and G. Thornton
“(nx1) Reconstructions of TiO₂(011) Revealed by Noncontact Atomic Force Microscopy and Scanning Tunneling Microscopy”
17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (nc-AFM 2014)
August 4th-8th, 2014, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan, 17:40-20:30
Poster, Tuesday August 5th, 2014, PT30
(34) K. Iwata, S. Yamazaki, and Y. Sugimoto
“AFM Measurement of Single PTCDA Molecule at Room Temperature”
17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (nc-AFM 2014)
August 4th-8th, 2014, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan, 17:40-20:30

Poster, Tuesday August 5th, 2014, PT36
(35) J. Onoda, M. Ondracek, A. Yurtsever, P. Jelinek, and Y. Sugimoto
“AFM study of initial and secondary oxidation products on the Si(111)-(7x7) surface”
17th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (nc-AFM 2014)
August 4th-8th, 2014, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan, 17:40-20:30
Poster, Tuesday August 5th, 2014, PT39

〔その他〕
ホームページ
<http://www.afm.k.u-tokyo.ac.jp/>

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

杉本 宜昭 (Sugimoto Yoshiaki)
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・
准教授
研究者番号：00432518