

Ⅷ.ー4 表面物性グループ

講師 東山 和幸

助教 久保 敦

大学院生 1名

【1】ゲルマニウム表面におけるシリコンの成長過程に関する実験的研究（東山）

Si(001)表面に Ge (≤ 1 ML)を吸着させると層状成長する。他方、過去の研究から、Siは Ge(001)表面上で島状成長することが示唆されている。Ge/Si 界面の性質を理解する上で、Si/Ge(001)初期成長過程の直接観察は重要である。ここでは、以前行った STM 観察の結果がまとまったので報告する。図1に Ge(001)清浄表面の LEED 図形と STM 像を示す。STM 像から、Ge-Ge ダイマーの大部分は対称であるが、欠陥付近では非対称で $c(4 \times 2)$ 局所構造を形成していることがわかる。これは LEED 図形にかすかなストリークが現れることと符合する。

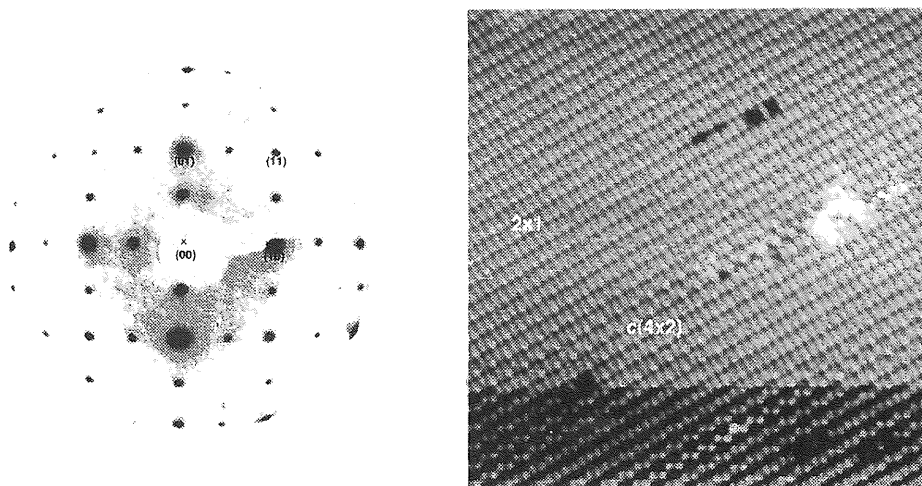


図1：左) Ge(001)清浄表面の LEED 図形（加速電圧 83eV）。右) STM 像（走査領域 20nm×20nm、試料バイアス電圧-1.5V、トンネル電流 2.2nA）。

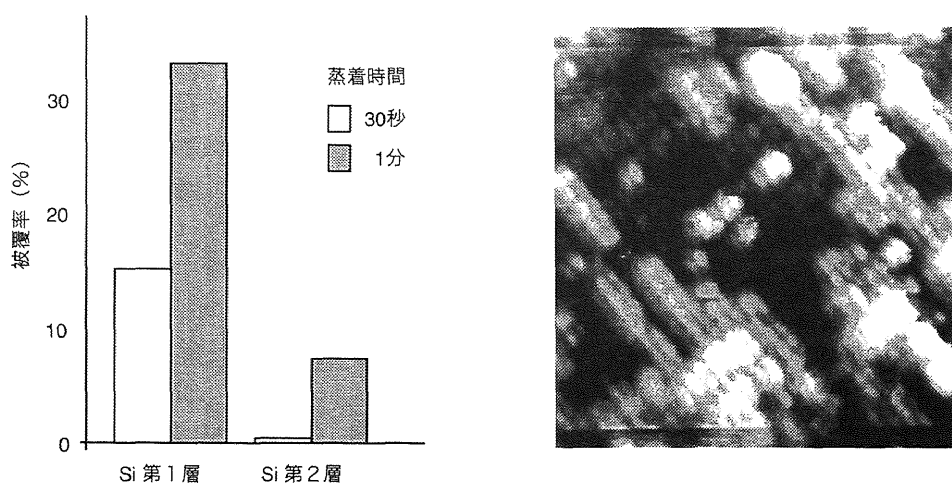


図2：左) Siを室温で蒸着したときの被覆率変化。右) Si (1.05ML)/Ge(001)の STM 像 (10nm×10nm、1.2V、2.1nA)。

図2左はSiを室温のGe(001)表面に蒸着したときの被覆率変化である。Siの個数はいくつかのSTM像を解析して求めた。1分当たりの吸着量はおよそ0.35MLと見積られる。30秒の場合と比べて1分ではSi第1層より第2層の増加率が大きい。これはSiが島状成長する傾向を明確に示している。図2右にSi3層からなる島状クラスターのSTM像を示す。真空に露出している部分はダイマー構造であることがわかる。しかし島の形状に規則性は認められず、結晶性も悪い。図3にGe(001)表面を380°Cに保持した状態でSiを成長させた場合のSTM像を示す。高さ1~2原子層、四角形状の島が存在する。図3右の原子像から、島の最上層は大部分非対称ダイマーで、高い $c(4 \times 2)$ 周期性を持つことがわかる。

Ge/Si(001)と比較すると、1) 両者とも非対称ダイマーが主要な構成要素、2) ダイマー欠損はGe/Si(001)ではダイマー列に垂直、Si/Ge(001)ではダイマー列に平行、3) Ge/Si(001)は層状成長、Si/Ge(001)は島状成長であることがわかる。1) のダイマーのバックリングは、SiとGeの格子不整合(4.2%)に起因する歪みエネルギーの緩和の結果生じたものと考えられる。3) はSiとGeの表面エネルギーの違い(1240 erg/cm² vs. 1100 erg/cm²)によって定性的に理解できる。しかし、2) の起源については不明であり、今後の研究が必要である。

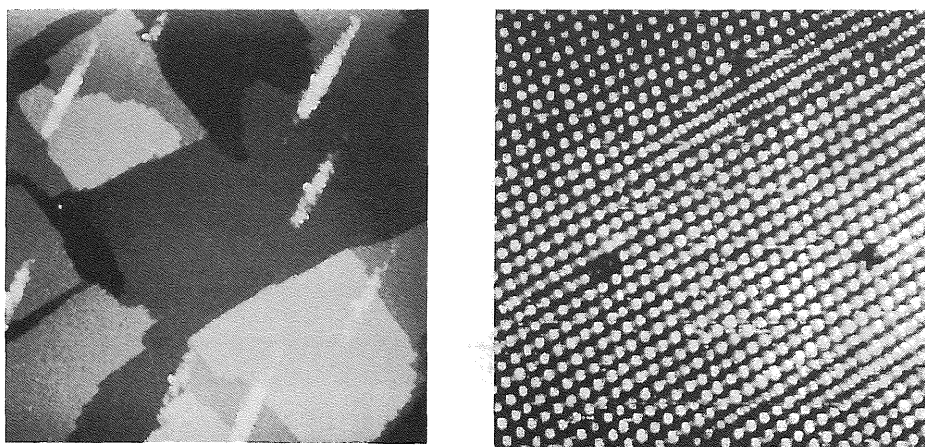


図3 : Si/Ge(001)表面のSTM像。Si蒸着量は1.05ML。左) 200nm×200nm、-1.0V、1.0nA。右) 左下のテラスの原子像。20nm×20nm、1.0V、1.0nA。

【2】 ナノスケール凝縮系における表面プラズモンの超高速ダイナミクス (久保)

(1) フェムト秒時間分解顕微鏡法による表面プラズモン可視化

微細な時空間領域における電子ダイナミクス、特にナノスケールの構造を有する金属表面に光励起される表面プラズモンの時間・空間分解観察を目的とし、フェムト秒時間分解蛍光顕微鏡の建設を行っている (図.1)。当装置は、①チタン・サファイアレーザーオシレーター、②マッハ-ツェンダー干渉計、③光学顕微鏡、④第二次高調波自己相関計測、からなる。本年度の進捗を以下に記す。当研究は、科研費特定領域研究、および物理学系若手奨励研究プロジェクトの支援を受けた。

a) 10フェムト秒級チタンサファイアレーザーの建設

電子コヒーレンスを時間分解観察するには、10フェムト秒級の超短パルス光源が必要である。チャープミラー分散補償を用いたチタン・サファイアレーザーオシレーターを建設し、非線形結晶を用いた第二次高調波自己相関法によりパルス幅の評価を行った (図.2)。得られたレーザーのスペックはパルス幅 16fs、平均出力 300mW、繰り返し周波数 90MHz であり、当初の目標を達成した。

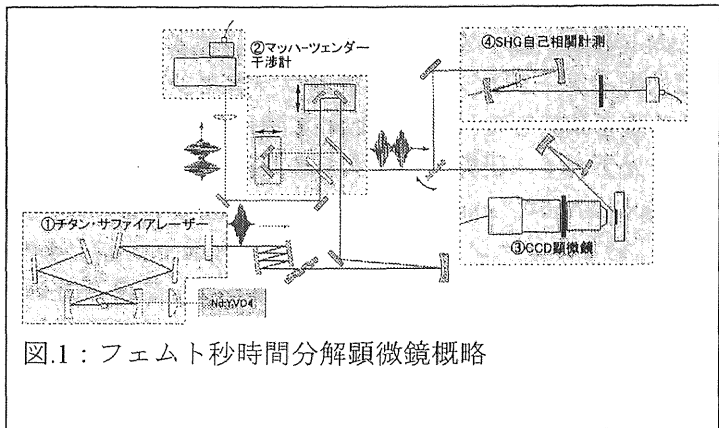


図.1：フェムト秒時間分解顕微鏡概略

b) マッハ-ツェンダー干渉計の開発と位相相関フェムト秒パルス対の発生

電子コヒーレンスの測定は、ポンプパルスで励起した分極振動と、遅延時間 τ_d を隔てたプローブパルスとの、物質内部での干渉が基になる。遅延時間が干渉計精度 ($<\lambda/25 = 30\text{nm}$) で決定されたポンプ-プローブパルス対を発生するため、高精度・高安定なマッハ-ツェンダー干渉計 (MZI) を開発した。干渉計の2つの光路長は、それぞれピエゾ素子とマイクロステップモーターで駆動される。 $\tau_d < 300\text{fs}$ の範囲で、任意の値に50アト秒精度で遅延を設定できる。図.3にレーザー光をMZIに通した後のスペクトルを示す。周期的な微細構造が時間的に揺らぐことなく安定して観測されていることから、パルス対の位相差が十分に精度良く決定されており、当初の目標を達成している事が分かる。

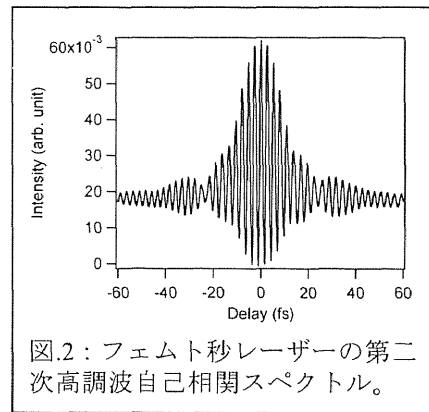


図.2：フェムト秒レーザーの第二次高調波自己相関スペクトル。

c) 光学顕微鏡システムの製作

超長作動距離対物レンズとスロースキャンカラーCCDカメラからなる光学顕微鏡システムを製作した。モニター上での視野は $50\mu\text{m}$ 四方程度であ

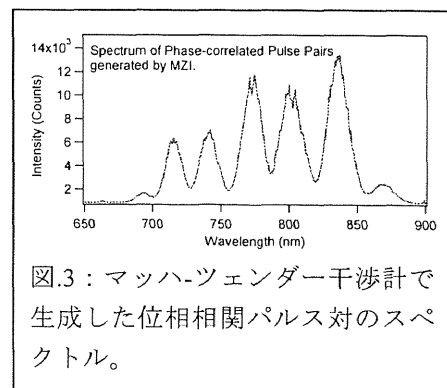


図.3：マッハ-ツェンダー干渉計で生成した位相相関パルス対のスペクトル。

り、空間分解能の設計値は $0.7\mu\text{m}$ である。

d) ナノ構造パターンの試作と蛍光顕微鏡観察

金属ナノ構造に励起される表面プラズモンの画像化のテストを行うため、ナノ光構造試料の試作と蛍光顕微鏡観察を行った。試料は幅 200nm 、高さ 70nm の銀リッジ構造であり、石英基板への電子ビームリソグラフィーによるパターンニングと銀蒸着により製作した。さらに、銀表面に励起された表面プラズモンを可視化するため、色素ドーブ PMMA を銀蒸着膜上に薄くスピコートした。励起光に 532nm 連続発振レーザーを用いて得られた蛍光顕微像を図.4 に示す。リッジ上にタイトフォーカスされたレーザースポットから、リッジ構造に沿って左右に伝搬する表面プラズモンが明瞭に画像化されている。同様に、励起光にフェムト秒レーザーを用いた場合についても、二光子励起蛍光イメージングにより表面プラズモンが画像化される事を確認した。本研究は NTT 物性科学基礎研究所・量子光デバイス研究グループとの共同研究である。

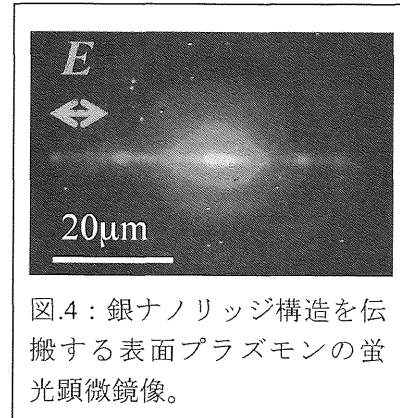


図.4：銀ナノリッジ構造を伝搬する表面プラズモンの蛍光顕微鏡像。

(2) シミュレーション法の開発

実験で得た表面プラズモンの画像から、プラズモン波束の伝搬速度、寿命、波長、空間分布などの情報を引き出すにはシミュレーションによる理論的解析が必要であり、以下に述べる研究を進めている。

a) 時間領域差分法 (Finite Difference Time Domain: FDTD) によるシミュレーション

表面プラズモンや近接場解析の方法として標準的に用いられている、FDTD 法によるシミュレーションを行っている。図.5 に、径 150nm のオクタヘドラル金ナノ粒子のモノマー、およびダイマー構造に対して、表面プラズモン共鳴による電場増強効果の励起波長依存性を計算した結果を示す。両者とも数 10 倍程度の電場増強を呈するが、モノマーが短波長側にほぼ一つのピークを示すのと対照的に、ダイマー構造の場合、短波長側に加え長波長側にもピークが現れている。スペクトル形状の変化は、2つの局在プラズモンモードが近接した事で両者間にクーロン相互作用が生じ、「プラズモン分子」と言える状態を形成した事に起因する。

分子状態には結合/反結合状態があり、エネルギー固有値や空間分布が異なっている。このような系を時間分解顕微鏡観察する事により、各固有状態の緩和過程や波動関数の位相に関する物理を観測す

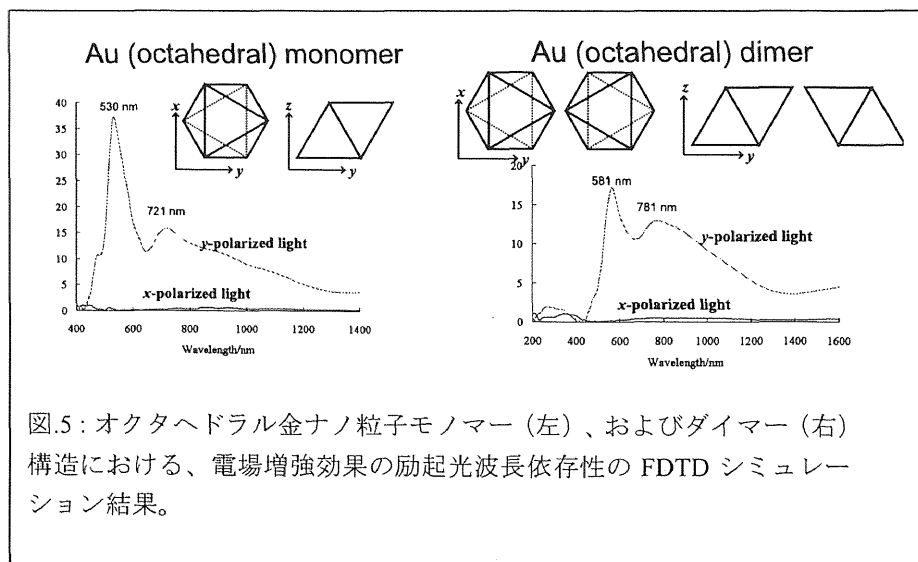


図.5：オクタヘドラル金ナノ粒子モノマー (左)、およびダイマー (右) 構造における、電場増強効果の励起光波長依存性の FDTD シミュレーション結果。

る事が可能になると予測される。本研究は、数理物質科学研究科化学専攻、寺西研究室との共同研究である。

【卒業論文】

1. 服部竜己、“超高速電子応答ダイナミクス観察のためのフェムト秒パルスレーザーの開発”

【研究発表】

[論文]

1. **久保敦**，“表面プラズモンのフェムト秒時間分解イメージング”，応用物理, **78**, (2009), p. 976-980.
2. S. Achilli, M. I. Trioni, E. V. Chulkov, P. M. Echenique, V. Sametoglu, N. Pontius, A. Winkelmann, **A. Kubo**, J. Zhao, and H. Petek, “Spectral properties of Cs and Ba on Cu(111) at very low coverage: Two-photon photoemission spectroscopy and electronic structure theory” Phys. Rev. B. **80**, 245419- 1-8 (2009)

[国際会議]

1. **A. Kubo** and H. Petek, “Femtosecond time-resolved imaging of surface plasmon.”, 7th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO-7), Jeju, Korea, Nov. 27, 2009.
2. **A. Kubo**, “Ultrafast dynamics of surface plasmon polaritons: Propagations, interferences, and focusing.”, TSAMS2009, Tsukuba, Japan, Oct. 10, 2009.

[招待講演 (国内)]

1. **久保敦**，“時間分解光電子顕微鏡法によるナノスケール光応答ダイナミクス”、第29回表面科学学術講演会、タワーホール舟橋、2009年10月27日
2. **久保敦**，“時間分解光電子顕微鏡による表面プラズモンの映像化”、日本顕微鏡学会 走査型プローブ顕微鏡分科会 平成21年度研究会、慶応大学、2009年12月15日
3. **久保敦**，“フェムト秒レーザー励起光電子顕微鏡による表面プラズモン可視化”、光波シンセシス研究グループ主催第15回研究会「超高速現象の可視化」、千葉大学、2009年7月3日
4. **久保敦**，“表面プラズモンの顕微的フェムト秒ダイナミクス”、第57回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム「プラズモニクスと分子制御」、東海大学、2010年3月17日
5. **久保敦**，“ナノスケール光学：表面プラズモンポラリトン”、光産業技術振興協会 第314回マンスリーセミナー、光産業技術振興協会、2009年7月21日

[国内学会]

1. **久保敦**，“Structure Effects on Light-Surface Plasmon Coupling.”、第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学、2010年3月17日
2. 工藤雅史、島田透、**久保敦**、北島正弘、田中正俊、鈴木隆則，“一次元に配列した金微粒子からの第二高調波発生”、第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学、2010年3月17日
3. **久保敦**、服部竜己，“表面プラズモンの顕微的フェムト秒ダイナミクス”、特定領域研究「光-分子強結合場」第6回シンポジウム、九州大学 西新プラザ、2010年1月30日
4. 江口美陽、小堀啓、**久保敦**、GWO Shangjr、寺西利治，“金ナノ粒子二量体の表面プラズモン共鳴結合モード”、特定領域研究「光-分子強結合場」第6回シンポジウム、九州大学 西

新プラザ、2010年1月30日

5. 江口美陽、小堀啓、久保敦、GWO Shangjr、寺西利治、“金ナノ粒子ダイマーにおける表面プラズモン結合モードの直接観察”、日本化学会第90回春季年会、近畿大学本部キャンパス、2010年3月27日