

原子レベルデバイス創製のための手法開発

阿部 真之

大阪大学大学院工学研究科
原子分子イオン制御理工学センター

概要: 昨年度に引き続き、本GCOEでは、原子レベルでのデバイスを実現するための手法に関して研究を行った。具体的には、原子分解能を有する周波数変調方式の原子間力顕微鏡を用いて、試料表面に埋め込まれたドーパント原子を先鋭な針（探針）を用いて入れ替えることでデバイスに必要な構造を実現するための研究を行ってきた。そのために、本研究では探針-試料間の位置制御技術、表面原子識別技術、原子組み替えに必要な力の定量化や原子組み替え手法などを確立することができた。

我々のグループでは、試料表面に埋め込まれている原子を動かすための手法（原子組み替え、）を発見し、文字を書くことに成功していた¹。この方法は、周波数変調方式の原子間力顕微鏡（Frequency Modulation Atomic Force Microscopy: FM-AFM）を用いて、隣接する二つの原子位置を入れ替える。動かされる原子は埋め込まれているので、実験は室温でも可能であることがこの手法の利点である。この手法を用いることで固体量子コンピュータのような原子レベルでのデバイスが実現すると期待される。本GCOEにおいて、原子レベルでのデバイスを実現するための種々の手法を考案・確立してきた。一方、この手法で原子を並べるには、いくつかの条件を満たさなければ不可能であり、いくつかの課題があった。主な課題2つを以下に示す。

（課題1） 原子組み替えは熱エネルギー kT を利用しており、実験は室温環境下で行う必要がある。しかし、室温環境下では熱ドリフトによって探針-試料間の相対位置のずれが生じるため、熱ドリフトが小さい非常にまれな時にしか実験ができない。さらに、熱ドリフトが小さいとしても、それがなくなることはなく、原子組み替え実験の精度を向上させることができない。

（課題2） 配列させる原子（おもにドーパント）は、試料表面（主にシリコン）第一層目に存在することを想定しているが、試料表面には様々な欠陥、吸着原子（主に水素と考えられる）が存在し、ドーパント原子とこれらの不純物を識別する必要がある。元素の識別の単純な方法は凹凸を比較することで行われているが、複数の原子・欠陥が存在する表面で、凹凸の違いによる比較は難しいと考えられる。した

がって、試料の凹凸以外で原子種を識別する方法が必要となってくる。

研究成果

プロジェクトの成果のいくつかを以下にあげる。

成果1:

ピコメートルオーダーでの探針位置決め技術の開発

上述の（課題1）に示した熱ドリフトの影響を抑える技術の開発に成功した。具体的には、探針先端原子を試料表面の任意の原子位置に固定できるもので、熱ドリフトによる位置のずれを一種のフィードバックによって補正している（アトムトラッキング）^{2,3}。さらに、あらかじめ熱ドリフト挙動を予測し位置の補正を行う（フィードフォワード）⁴ことを可能にした。アトムトラッキングとフィードフォワード技術を、試料表面の測定に適用した。図1はSi(111)-(7x7)表面のFM-AFM測定を室温環境下で行った結果である。図1(a)-(c)は熱ドリフト補正を行いながら連続して、画像測定を行った結果であり、図1(d)-(f)は補正を行っていない場合である。測定範囲を固定しているにもかかわらず、補正を行っていない場合（(d)-(f)）は画像化されている位置がずれていっているが（図中の星印参照）、補正を入れている場合（(a)-(c)）は原子位置が同じであることがわかる。このようにアトムトラッキングとフィードフォワードを組み込むことで室温環境下でも、擬似的に極低温環境を作り出すことを可能にした。この結果、室温環境下であっても、探針の動きを精度良く制御することが可能となり、FM-AFMを用いた原子識別や原子操作の実験のレベルや再現性が飛躍的に向上した。

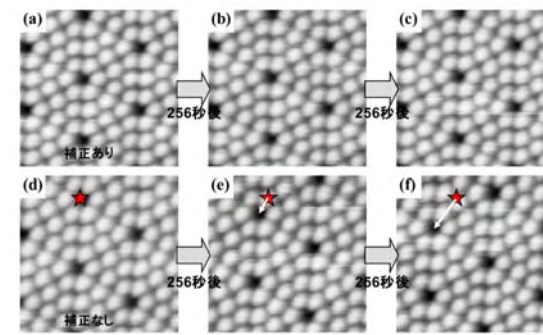


図1 Si(111)-(7x7)表面におけるFM-AFMの連続測定の画像。測定は室温で行った。(a)-(c)熱ドリフト補正を入れた場合の画像、(d)-(f)熱ドリフト補正なしの場合の画像。

成果2:原子識別手法の確立

（課題2）に対する試料表面原子種を識別するための手法として、フォーススペクトロスコピーを利用することを考案した。フォーススペクトロスコピーは、探針原子と試料原子の間に働く力の距離依存性を求める方法である。フォーススペクトロスコピーを高精度に行うことで、原子種の識別だけでなく、表面活性度、結合半径、結合力、結合ポテンシャル、電荷移動、原子間の絶対距離といった、力学測定固有の局所的な情報を抽出することが可能になる。この測定手法は、「原子レベル」という観点から走査型トンネル分光（STS）や非弾性トンネル振動分光（IETS）に匹敵する価値があり、さらには絶縁体へも利用できることから、新しい物性計測手法として期待される。しかしながら、熱ドリフトなどによる課題によって技術的に困難であった。そこで、成果1の技術を利用して熱ドリフトの影響を排除し、探針と試料原子の位置をピコメートルオーダーで制御できる手法を考案した。室温環境においてもフォーススペクトロスコピーを行うことが可能となり、測定データの再現性も大幅に改善された。その結果、フォーススペクトロスコピーのノイズレベルを5~10倍向上することが可能になり、原子識別への利用が可能となった。フォーススペクトロスコピーによる原子種識別の例を行った結果を図2に示す⁵。Si(111)-(7x7)清浄表面上に、SnとPb原子を蒸着シアンルすることで、SiおよびSn、Pbの3つのアドアトムが表面に混在する表面を作成し、FM-AFM測定を行うと、図2(a)のような画像が得られた。明るい（原子位置が高い）原子と暗い（原子位置が低い）原子の2種

類があるように見える。そこで、図2(a)中にあるそれぞれの原子の位置（相対的な高さ）のヒストグラムを作成し、3原子種の高さの違いが得られるかどうかを確認したが、図2(b)に示すように、高さの分布から3種類の原子の種類を識別することはできなかった。そこで、図2(a)中の39個の原子上でフォーススペクトロスコピーを行い、測定量である Δf -Z曲線からF-Z曲線を求めた（図2(c)）。F-Z曲線は3つのパターンがあることがわかり、それぞれの曲線の最大引力のヒストグラムを求めた（図2(d)）。その結果、ヒストグラムの分布が三つに分かれ、最大引力の値が一番大きいグループの平均値を1.0とすると残り二つのグループの平均値はそれぞれ0.77および0.59であった。これは、Sn/Si(111)-($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)およびPb/Si(111)-($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)表面におけるSn/SiおよびPb/Siの最大引力値の比と同じであることから、それぞれがSnおよびPb原子であることがわかり、凹凸からは識別できなかった原子がフォーススペクトロスコピーで識別できることがわかった。

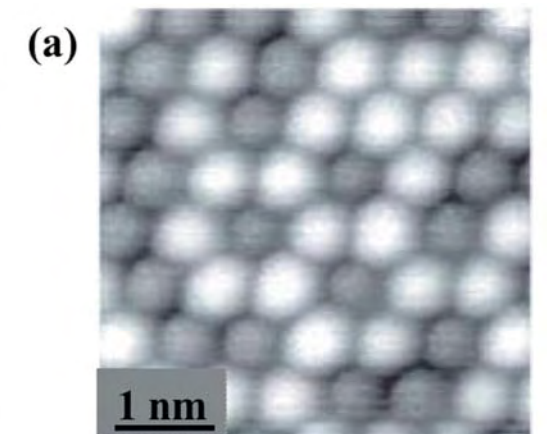


図2(a) SiおよびPb、Snが混在する表面のFM-AFM凹凸像。

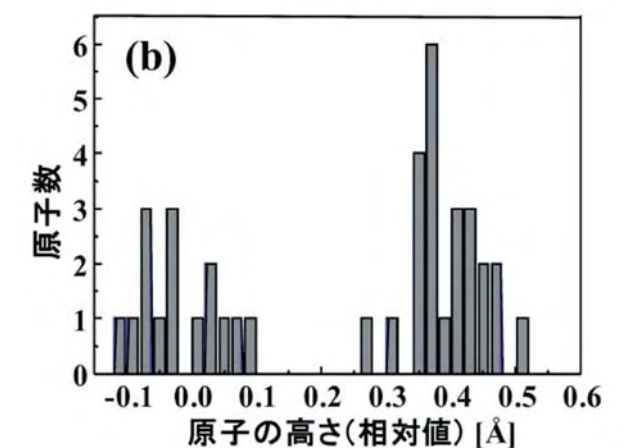


図2(b) 図(a)のそれぞれの原子の高さのヒストグラム。

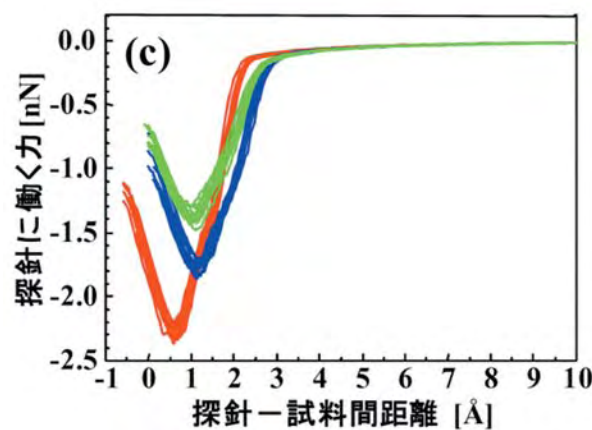


図2(c) 図(a)のそれぞれの原子における力-距離曲線測定の結果。

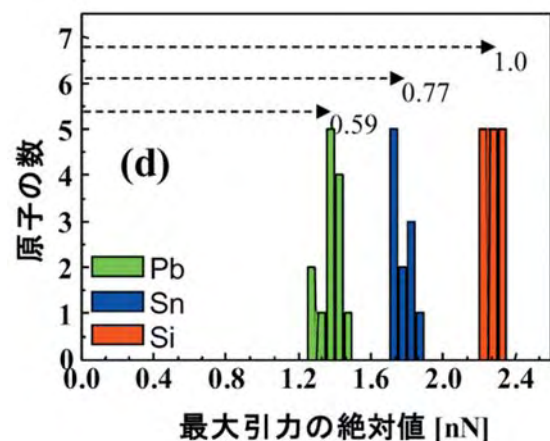


図2(d) 力-距離曲線測定の結果から得られた最大引力値のヒストグラム。

実験を進めて行くにつれて、フォーススペクトロスコピーだけで原子種の識別を行うには、原子組み替え実験の効率が悪くなると判断し、新しい原子識別方法を考案した。具体的には、フォーススペクトロスコピーの測定概念を拡張した、探針と試料の相互作用力場を二次元的に視覚化するフォスマッピングによる原子種の識別(図3)や、画像として原子を識別する手法を開発した(図4)⁶。

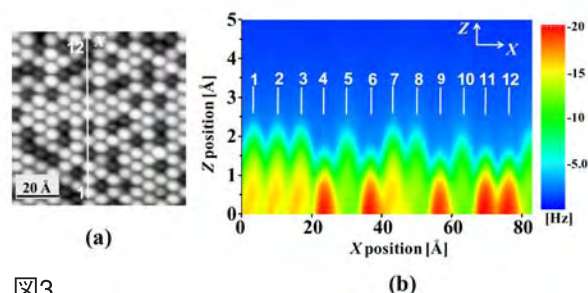


図3 (a) SiおよびPb、Snが混在する表面のFM-AFM凹凸像。(b) 図(a)上の矢印で行った二次元フォスマッピング。凹凸像では明暗2種類しか区別できないが、フォスマッピングでは、3つのパターンが認識できている。

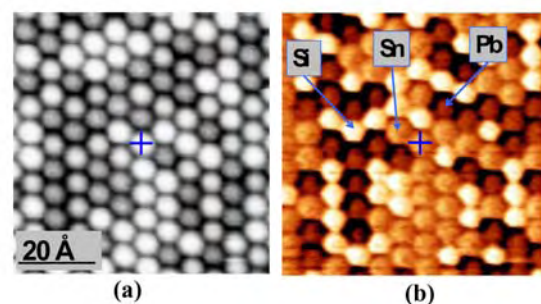


図4 (a) AFM凹凸像と(b)原子識別像の同時測定。

成果3: 室温における原子操作に必要な力の定量測定

原子組み替えの特徴は、埋め込まれている原子を室温環境で動かすことができることにある。この場合、AFM探針を用いて、試料の原子間の結合を切りながら原子を動かすことになる。再現性良く原子組み替えを行うためには、原子操作に必要な力を見積もりたいと考えている。図5は室温における原子操作実験の一例である。

Si(111)-(7x7)表面において、空欠陥が存在するハーフユニットセルに着目し、空欠陥に隣接するSiアトムを、空欠陥に移動する原子操作の実験を行った結果である⁷。空欠陥に隣接する原子を移動するので、原子組み替えではないが、定量性を議論するためにこの表面で実験を行った。Siアトムの移動は、動かしたいSiアトムと空欠陥の方向にAFM探針を走査するが、通常の画像測定よりも探針を試料に近づけ、通常の画像測定とは異なる走査を行っている。具体的には、図5(h)に示すように、アトムを空欠陥へ動かす向きにはAFM探針を試料に近づけ走査し、いったん相互作用領域からはずれる場所まで探針を離してからはじめの場所に探針を戻す。これを数回繰り返していくとアトムは空欠陥へ移動する。図5(a)から(g)は連続的に原子操作を行った結果である。画像と測定する場合と原子を動かす場合に必要周波数シフト Δf から力とポテンシャルを計算したのが、表1である。シミュレーションの結果からSi原子と隣接する欠陥とのバリアハイトが約1.2 eVであることから、非常に小さいポテンシャルエネルギーで原子が動いていることがわかった。この結果は、原子の移動(組み替え)には熱的エネルギーの効果や探針に働く横方向の力の寄与が大きいことを示している。横方向の力の寄与を求めるために、フォスマッピングから横方向の力を求めるための方法を考案しており⁸、今後、原子組み替えの定量実験に使いたいと考えている。

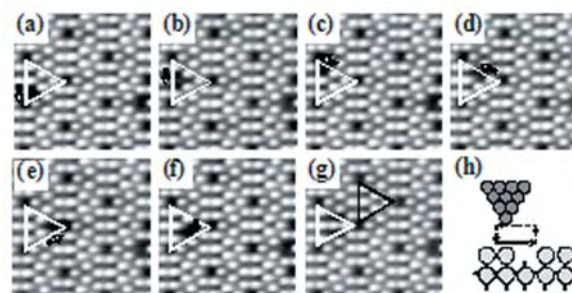


図5 Si(111)-(7x7)表面における原子操作。空欠陥の存在するハーフユニットセル内で、空欠陥に隣接するアトムを空欠陥側に移動させ、その前後でFM-AFM凹凸像を測定した。

表1

図5の実験における探針に働く力と引力ポテンシャル

実験	探針にかかる力	ポテンシャル
画像化	0.16 nN	0.065 eV
原子操作	0.47 nN	0.127 eV

成果4: 新しい原子操作モードの発見

これまでの室温における原子操作実験¹では、隣接する原子をAFM探針で入れ替えるが、この手法で実際にキュービットとなるP原子を並び替えるには非常に時間がかかる。この課題を解決できるかもしれない原子操作の新しいモードを発見した⁹。この方法では、探針先端にある原子をペン先のインクのように試料表面に落としていき、埋め込んでいく(原子ペン)。この方法では、一つの原子を並べるのに一回の原子操作で完了するので非常に効率がよい。この方法で文字を書いた結果を図6に示す。画像測定時間も含めて1時間半程度で作成することができた。

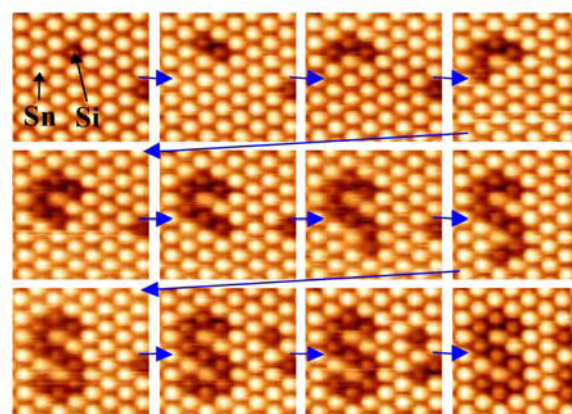


図6 “原子ペン”による原子文字。

最後に

以上に述べた世界的成果は、本GCOEプログラムによる、博士学生支援や学外交流支援による、学外研究者とのディスカッションや共同研究によるところが大きい。今後もこのような機会を利用して世界的な研究成果をあげていきたいと考えている。なお、本研究の成果をまとめた詳細な日本語解説もいくつか発表している¹⁰。

参考文献

- 1 Y. Sugimoto, M. Abe, S. Hirayama, N. Oyabu, O. Custance, and S. Morita, Nature Materials 4, 156 (2005).
- 2 M. Abe, Y. Sugimoto, O. Custance, and S. Morita, Appl. Phys. Lett. 87, 173503 (2005).
- 3 M. Abe, Y. Sugimoto, O. Custance, and S. Morita, Nanotechnology 16, 3029 (2005).
- 4 M. Abe, Y. Sugimoto, T. Namikawa, K. Morita, N. Oyabu, and S. Morita, Appl. Phys. Lett. 90, 203103 (2007).
- 5 Y. Sugimoto, P. Pou, M. Abe, J. Pavel, R. Perez, S. Morita, and O. Custance, Nature 446, 64 (2007).
- 6 Y. Sugimoto, T. Namikawa, M. Abe, and S. Morita, Appl. Phys. Lett. 94, 023108 (2009).
- 7 Y. Sugimoto, P. Jelinek, P. Pou, M. Abe, and S. Morita, R. Perez, O. Custance: Phys. Rev. Lett. 98, 106104 (2007).
- 8 Y. Sugimoto, T. Namikawa, K. Miki, M. Abe, and S. Morita: Phys. Rev. B 77, 195424 (2008).
- 9 Y. Sugimoto, P. Pou, O. Custance, P. Jelinek, M. Abe, R. Perez, S. Morita, Science 322, 413 (2008).
- 10 例えば、阿部真之、杉本宜昭、森田清三、日本物理学会誌 62, 829 (2007).