

課題名 (タイトル) :

絶縁体超薄膜を蒸着した金属基板の誘電特性の解明

利用者氏名 : 三輪邦之

所属 : Kim 表面界面科学研究室

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

絶縁体薄膜を蒸着した金属表面の誘電特性は、ナノ物性の解明といった基礎科学的側面に加え、種々の電子・光デバイスや不均一触媒に用いる新奇材料の開発という産業応用の側面からも盛んに調べられている。近年は絶縁体超薄膜の厚さを数原子スケールで制御可能な薄膜作製技術が確立されつつあり、それらの構造や物性を調べる理論的および実験的研究は、急速な発展が始まりつつある揺籃期にある。特に、上記のような、数原子層レベルの空間スケールの物質に関して、その特性を理解するためには、量子力学に基づく微視的な立場から構造や物性を調べる理論研究の推進が肝要である。本研究では、薄膜の厚さを変化させることで、(1) 孤立した「絶縁体超薄膜」の物性、および、(2) 金属基板を含めた「絶縁体超薄膜蒸着金属表面系」の物性、を制御可能であることに着目し、これらの系の構造や物性を密度汎関数理論 (DFT) に基づく第一原理計算を用いて解明することを目的とする。具体的には、広いバンドギャップを持つ絶縁体である NaCl の超薄膜を、Au などの貴金属表面に蒸着した系を取り扱う。

2. 具体的な利用内容、計算方法

清浄 Au(111)表面、および、NaCl の 1, 2, 3, 4 原子層の超薄膜が蒸着された Au(111)表面について、電子構造および誘電特性を調べた。Quantum ESPRESSO コードを使用して、平面波展開およびウルトラソフト擬ポテンシャル法を用いた DFT 計算を行った。ここでは特に、系に有限の電圧が印加された系の電子状態計算を行うため、有効遮蔽媒質(ESM)法[M. Otani and O. Sugino, PRB 73, 115407 (2006).]を援用した。

3. 結果

Au 表面に平行な xy 平面で平均化した局所状態密度 (Local density of states: LDOS) について、縦軸をエネルギー、横軸を表面からの距離 z としてプロットした結果を図 1(b)に示す。NaCl 薄膜の価電子帯の上端 (Conduction band minimum: CBM) が系の Fermi エネルギー (E_F) より 1.5-2.0eV だけ低いエネルギーに位置していることがわかる。図 1(d)に電圧印加下での LDOS の計算結果を示す。ここでは ESM 法を援用し、走査トンネル顕微鏡を用いた観察を想定した計算条件 (最表面原子層から表面垂直方向 1 nm に対向電極が位置し、スラブ系に 6 V の電圧が印加された場合に対応する設定)のもと、電子状態計算を行った。NaCl/Au 界面から真空/NaCl の界面への方向に沿って、NaCl 薄膜の CBM の位置が高エネルギー側にシフトしているのがわかる。この結果は電圧の印加により NaCl 薄膜のバンド曲がり誘起されたことに対応している。

さらに静電ポテンシャルの空間分布の計算結果から、NaCl 薄膜内部での電圧降下 V_{NaCl} および真空領域での電圧降下 V_{vac} を求めた。その結果、バイアス電圧 V_{bias} を 0 から 8 V まで増加させた際、 V_{NaCl} および V_{vac} は、 V_{bias} に比例して増加することがわかった。電圧の印加による誘起電荷を求め、これらの結果から、Au 表面上の NaCl 超薄膜の静電容量 C_{NaCl} を求めたところ、NaCl の膜厚が 2, 3, 4 原子層の場合 C_{NaCl} は膜厚に反比例することがわかった。また Au 表面上 NaCl 薄膜、真空に孤立した NaCl 薄膜、バルクの NaCl 結晶の誘電率をそれぞれ比較したところ、Au 上の NaCl 薄膜の誘電率はバルク結晶に比べて大きく、free standing の NaCl 薄膜の誘電率はバルク結晶に比べて小さいことがわかった。現在、これらの起源を解析中である。

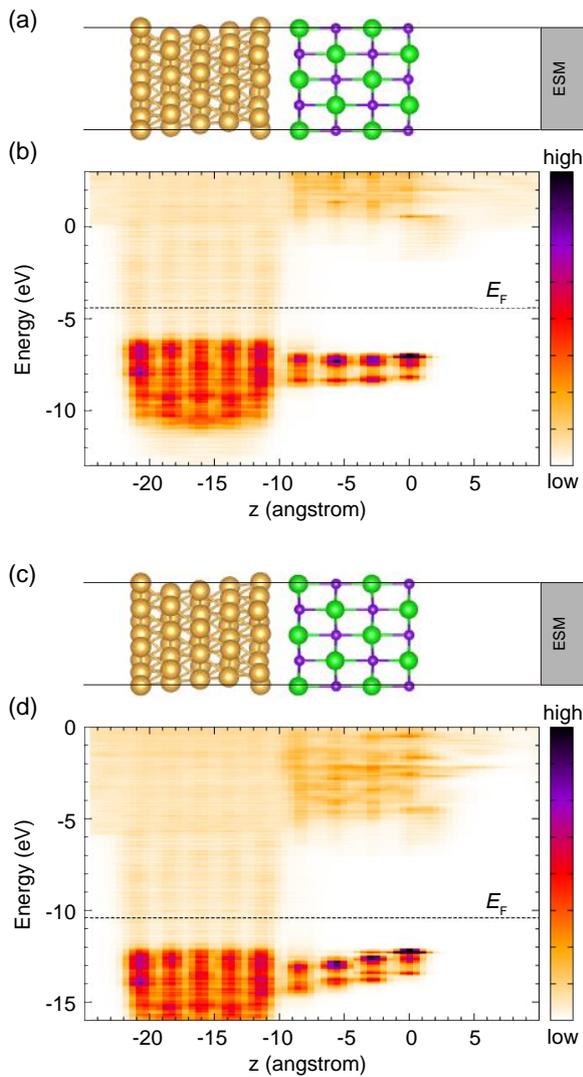


図 1(a) Au(111) 表面上の 4 原子層の NaCl 薄膜の最安定原子構造。(b) 局所状態密度 (LDOS) の空間分布。表面に平行な xy 平面で平均化した LDOS を、縦軸をエネルギー、横軸を NaCl 最表面からの距離 z としてプロットしている。点線は系の Fermi エネルギーの位置 E_F を表す。(c) 6V のバイアス電圧を印加した際の系の最安定原子構造。(d) 6V のバイアス電圧を印加した際の LDOS の空間分布。

4. まとめ

清浄 Au(111) 表面および 1-4 原子層の NaCl 超薄膜が吸着した Au(111) 表面の誘電特性を、DFT 計算により解析した。系に有限電圧が印加された際の局所状態密度 (LDOS) の空間分布の結果から、電圧印加により生じるバンド曲がりを可視化することができた。また静電ポテンシャルエネルギーの空間分布の計算結果から、絶縁体薄膜内部での電圧降下を求め、薄膜の静電容量および誘電率を求めた。近年、NaCl 薄膜を蒸着した Au および Ag

表面に分子を蒸着した系の電気伝導特性および光学特性を調べた実験が行われ、その結果を解釈するためには、NaCl 超薄膜の誘電特性の解析が肝要となっている。今回得られた結果が本実験の解釈に大きく寄与できると考えられる。

5. 今後の計画・展望

有限電圧下でのシミュレーションを推進するとともに、得られた計算結果を実験結果と比較する。これにより数原子層の絶縁体超薄膜の誘電特性を求める。また本研究を応用し、グラフェンや二硫化モリブデンといった 2 次元物質が吸着した固体表面を対象に、電圧印可下での電子状態や誘電特性の研究を行う。