

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(1)

理研における所属研究室名: (1)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

昨年度に引き続き、NaCl/Au(111)表面を対象として、系に電圧を印加した場合での電子状態と誘電率を計算した。その結果、NaCl 薄膜の膜厚が増加するに従い、NaCl 薄膜の誘電率が小さくなることがわかった。その機構解明のために、

free standing の NaCl 薄膜との比較を行い、解析を行った。また、表面近傍によく局在している電子状態が、有限電圧下で現れることがわかり、これらは Gundlach oscillation states と呼ばれる電子状態と見なせることがわかった。さらに、Gundlach oscillation states のエネルギー準位の決定には、真空領域での静電ポテンシャルの分布のみならず、NaCl 薄膜での静電ポテンシャル分布も重要であることを見出した。2018 年に NaCl 吸着 Au(111)表面の STM 観察を行った実験研究 [Miyabi Imai-Imada et al., Phys. Rev. B 98 (2018) 201403(R)] にて、Gundlach oscillation states の固有エネルギーが調べられているので、理論と実験の比較を行い、それらとの対応を踏まえ、最終的な解析を進めている。

## 4. まとめ

Au(111)表面上にて、NaCl の 1, 2, 3, 4 原子層の超薄膜が蒸着された系の誘電特性を、第一原理電子状態計算を用いて調べた。ESM 法を援用し、系に有限電圧が印加された際の誘電応答における、NaCl 超薄膜の膜厚変化の影響を調べた。また電圧印加時に観測される、特徴的な表面状態について、そのエネルギー位置が決める要因を解析した。

## 5. 今後の計画・展望

Gundlach oscillation states のエネルギー準位  $E_n$  を STM で観測する実験手法は、基板の局所的な仕事関数をナノメートルスケールの空間分解能で調べる手法としてしばしば利用される。清浄金属表面においては、 $E_n$  と基板表面の仕事関数の関係がよく対応づけられており、実験結果から試料表面の局所的な仕事関数を推察することができる[C. L. Lin et al., Phys. Rev. Lett. 99 (2007) 216103]。しかし、本研究で解析したような絶縁体薄膜が蒸着された金属表面では、 $E_n$  と基板表面の仕事関数の関係の十分理解されていない。特に本研究で得た計算結果から、NaCl 超薄膜内部での静電ポテンシャル分布が  $E_n$  に影響することが考えられ、清浄金属表面で用いられるような単純な解析から基板の仕事関数は求められない。今後、 $E_n$  と仕事関数の対応関係を明ら

## 2019年度 利用報告書

かにし、絶縁体薄膜が蒸着された金属表面においても、Gundlach oscillation states の STM 観察から試料の局所的な仕事関数を決めることができる方法を提案できないか考察する予定である。