

電子波と表面

長谷川修司

東京大学理学系研究科物理学教室

§ 1. はじめに

電子波の干渉、回折、トンネル、定在波などの現象を利用すると、表面の原子配列構造や電子状態、磁気構造などを調べられる。このような電子波の振舞は、真空中だけでなく、いわゆるメソスコピック系の固体内でも同様に顕著に見られ、その電気特性などに重大な影響を及ぼす。このサブゼミでは、私の研究の周辺の表面物理、メソスコピック物理、あるいは、ナノテクノロジーと言われる分野での最近のトピックスを平易に紹介する。§ 2で電子のコヒーレンスと電子波の二重スリットによる干渉実験から説き起こし、§ 3では、電子波の干渉現象を利用した電子線ホログラフィ、§ 4では、電子の回折・定在波を利用した反射高速電子回折、§ 5では、電子のトンネル現象を利用した走査トンネル顕微鏡、そして、§ 6では、真空中の電子波とのアナロジーから固体中での電子波の振舞について解説し、表面物理とメソスコピック物理との接点に触れてみたい。

§ 2. 電子波の生成とコヒーレンス

J.J. Thomson は、1897年以降の一連の論文で、陰極線が荷電粒子からなること、この粒子が原子よりずっと軽い質量を持つことを見だし、電子を発見した。以後、この電子の粒子説が堅く信じられてきたが、1922年のDavissonとKunsmanの電子線の散乱・回折実験に端を発し、1923年のde Broglieによる電子の波動説、1926のSchrödingerの波動方程式、1927年のDavissonとGermer、G.P. Thomson (J.J. Thomsonの息子)による電子の波動性の実験的証明がなされ、量子論へと発展していくわけである。Davissonらの実験は現在のLEED、ThomsonのはTED、1928年の西川正治と菊池正士の電子回折は今で言うRHEEDである。ここでは量子力学の教科書の冒頭に出てくる電子の波動性を、最近の教育的な実験と照らし合せて復習してみる。

2.1. 電子波の二重スリット干渉実験

電子銃のエミッター (例えばタングステン・フィラメントの先端) は理想的な点光源ではないので、有限な大きさの領域から電子が放射される。また、放射される電子のエネルギーがすべてそろっているわけではなく、ある幅でバラ付いている。量子力学では、このような電子

を、縦方向 (進行方向) にも横方向 (進行方向に垂直方向) にも有限な広がりをもつ波束として取り扱う。つまり、電子銃から放射された電子線とは、お互いに incoherent な個々の電子の波束がならんで進んでいるものである。通常、個々の波束間の距離は十分大きいので、波束同士の重なりや相関は無視してよい。

だから、電子波の干渉・回折現象は本質的に一個の電子について起こる。つまり自分自身との干渉効果である。干渉縞や回折スポットは、波動関数がほぼ同じだが、incoherent な別個の電子の集合によって形作られる。電子波の干渉縞の形成過程を見た実験が外村らによってなされている[1] (図1)。これは、次の節で述べる電界放射電子銃と電子線バイプリズムという装置を電子顕微鏡の中に入れて行った実験で、原理的には光のYoungの二重スリット干渉実験を電子で行ったものである。観察スクリーン面上に到達した個々の電子は位置敏感型検出器で検出され、モニタ上に一つの輝点として表示される。一つの輝点が一個の電子に対応する。観察結果が図1(b)~(e)に示されている。到達した電子の数

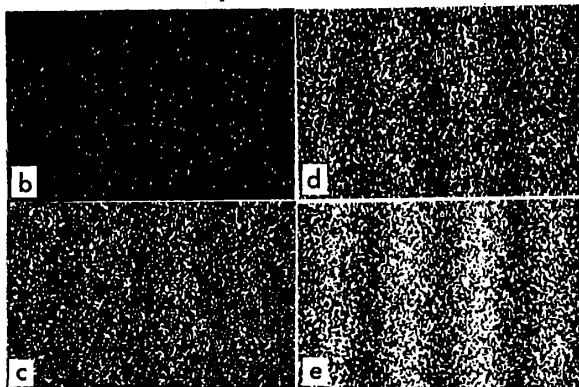
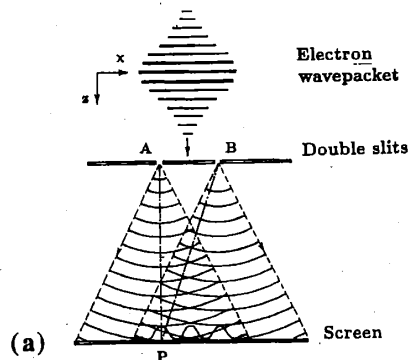


図1. 電子波を使ったYoungの二重スリット実験[1]。画面上の電子の数は、(b)100, (c)3000, (d)20000, (e)70000個。

が少ないときには、それらはランダムに分布しているように見える。Schrödinger 方程式を解いて波動関数が求められても、一個一個の電子がどこに到着するのか、まったくわからないわけである。電子の波動関数はスクリーン全体に広がっている、つまり、スクリーン上のあらゆる場所に到着する確率を持っている。しかし、検出された瞬間に波束が収縮して、ある特定の箇所だけの確率が1となり、その他の場所の確率が0となる（この波動関数の変化は因果関係によらず、超光速で起こる）。つまり、粒子として検出されるのである。到達電子の数が増えるにつれて、縞模様が認識できるようになる。我々は波動関数を使ってこの縞模様を計算できるだけである。このように「電子の波」とは、多数個の電子の統計的な振舞を記述する確率密度波という意味である。これが電子の波動・粒子二重性である。

電子の波束の大きさを見積もってみよう。干渉縞ができるためには、一個の電子が両方のスリットA、Bを同時に通過しなければならないので、波束の「幅」 L_t （横コヒーレンス長）はAB間距離より大きい必要がある。波束の「長さ」 L_l （縦コヒーレンス長）は、行路差BP-APよりも長い必要がある。さもないと、各スリットA、Bから出た部分波の位相関係が観測点Pで決まらない。波束の大きさは、不確定性関係から決まる（電子線はz軸に沿って進むとする）；

$$\Delta x \cdot \Delta p_x \sim h \quad (1)$$

$$\Delta z \cdot \Delta p_z \sim h \quad (2)$$

Δx と Δz は電子の位置の不確定さであり、これらがとりも直さず波束の幅 L_t と長さ L_l である。運動量の不確定さ Δp_x と Δp_z は、それぞれ、進行方向とエネルギーの不確定さに起因する。電子の進行方向の「発散角」 β を $\beta = \Delta p_x / p_z$ と定義すると、波長 $\lambda = h / p_z$ だから、(1)式より

$$L_t \sim \lambda / \beta \quad (3)$$

また、縦コヒーレンス長は(2)式より電子のエネルギーE、あるいは波長 λ の不確定さ ΔE 、 $\Delta \lambda$ を使って、

$$L_l \sim \lambda^2 / 2 \Delta \lambda = \lambda \cdot E / \Delta E \quad (4)$$

上に述べた不確定性は一個の電子に関するものであった。つまり、一個の電子が、ある確率で異なる方向に、異なるエネルギーで同時に進むというのである。しかし、実験では、個々の電子は観察スクリーン面上のある特定の点に、ある特定の飛行時間の後に到達する。つまり、進行方向やエネルギーに不確定などあるようには見えない。だから、不確定性の概念というのは、一個の電子ではなく、多数の電子の統計的性質を表すものと解釈されるべきである。図1(b)のように少数個の電子では何の意味も持たない。つまり、波動関数は同じだが、しかし別々の多数の電子からなる集団を考えて、その集団内で進行方向やエネルギーに分布が存在すると考えるべきである（一個一個の電子はそれぞれある特定の進行

方向と一定のエネルギーを持っている）。こう解釈すると、一個の電子の進行方向とエネルギーの不確定さ β と ΔE は、多数個の電子からなる電子線の開き角とエネルギーのバラつきとなり、これらは実験的に制御できるパラメータである。非常に小さいピンホールやレンズを使って電子線の開き角 β を小さくして（つまり平行ビームにして）、横コヒーレンス長 L_t を原理的にはいくらでも大きくできるが、しかし、そうすると、電子線の強度が非常に弱くなってしまふ。だから、現実には L_t は電子線の輝度（単位立体角・面積当たりの電流値）で制限される。その輝度は、電子源の大きさによって決る。電子源が小さくて理想的な点光源に近いほど高い輝度のビームが得られる。また、縦コヒーレンス長 L_l を決定する電子線のエネルギーのバラつきも（電源のふらつきが無ければ）電子源の特性で決定される。高温のエミッターから放射される熱電子ビームより、室温のエミッターから放射される電界放射電子ビームのほうが単色ビームに近い。このように電子線のコヒーレンスは、実験的に電子源そのものできまってしまう。

2.2. 電子源と電子干渉計

よく用いられる電子源として熱電子銃（図2(a)）と電界放射電子銃（図2(b)）がある。前者には、ヘアピン型とポイントフィラメント型があり、高温に加熱されたフィラメントから放射される熱電子を利用する

(1883年、Edison、1903年、Wehnelt、1909年、Richardson、1956年、日比)。また、後者の電子銃では、ティップ先端に集中した強電界によるトンネル効果で放射された電子を利用する（1928年、Fowler & Nordheim、1936年、Müller、1968年、Crewe）。各電子銃の特性と放射された電子波のコヒーレンス長を表1にまとめてある。光源サイズが小さく、エネルギー

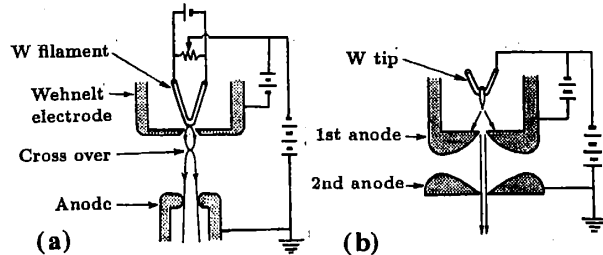


図2. 電子銃の模式図。(a)ヘアピン型熱電子銃、(b)電界放射電子銃。

	Thermionic gun	Field-emission gun
source size (μm)	~ 20	~ 0.01
energy spread (eV)	~ 2	~ 0.3
brightness at 100keV ($\text{A}/\text{cm}^2/\text{sr}$)	$\sim 5 \times 10^5$	$\sim 5 \times 10^8$
longitudinal coherence length (μm)	~ 0.2	~ 1.3
transverse coherence length (μm)	~ 0.02	~ 0.6
l_l expanded by lenses (μm)	~ 2	~ 300

表1. 熱電子銃と電界放射電子銃の比較。

の揃った電界放射電子ビームの方が1桁以上コヒーレンスに優れ、横コヒーレンス長を $300\ \mu\text{m}$ にも大きくできる。干渉実験には電界放射電子銃が不可欠である。RHEEDなど結晶による通常の回折実験では、 $100\ \text{nm}$ 程度の横コヒーレンス長で十分なので、簡便な熱電子ビームがよく使われる。

結晶は電子線に対する干渉計とみなせるが(回折は干渉現象そのもの)、干渉現象のパラメータ(干渉縞の間隔など)を任意に変えられない。もっと融通のきく電子干渉計として、図3の電子線バイプリズムがよく使われ(1956年、Möllenstedt & Dücker)、これは光学干渉で使われるFresnelのバイプリズムと全く同じ働きを電子波に対して持っている。正の電位が加えられた細い金属ワイヤ(直径数百nm)が中心に渡されており、両側に接地電位の平板電極を2枚置く。ワイヤ周りのできる軸対称な静電場によって、ワイヤの両側を通過する電子波は中心方向に引き寄せられて重なって干渉する。だから、これは波面分割型のビームスプリッターである。この作用によって、光源Oから放射された球面電子波は、あたかも二つの仮想光源AとBから放射されたように重畳・干渉させることができる。これは、とりも直さず図1(a)に示したYoungの二重スリットによる干渉実験となる。図1の実験結果はこのようにして得られた。電子線バイプリズムの電場による偏向角 δ は $10^{-4}\ \text{rad}$ 程度で、仮想光源A、B間の距離 $d \sim 10\ \mu\text{m}$ 、干渉縞間隔は $0.1\ \mu\text{m}$ となる。だから、この干渉縞を実際に観察するためには電子顕微鏡の電子光学系で拡大する必要がある。

§ 3. 干渉 --- 電子線ホログラフィー ---

上述の電子の干渉現象を利用して電子波の位相分布を直接観測するのが電子線ホログラフィーである[2]。ここでは、その原理とともに、応用例として超伝導体表面上に突き出た量子化磁束の観察と、§ 6でも出てくるAharonov-Bohm効果の実証実験を解説する。

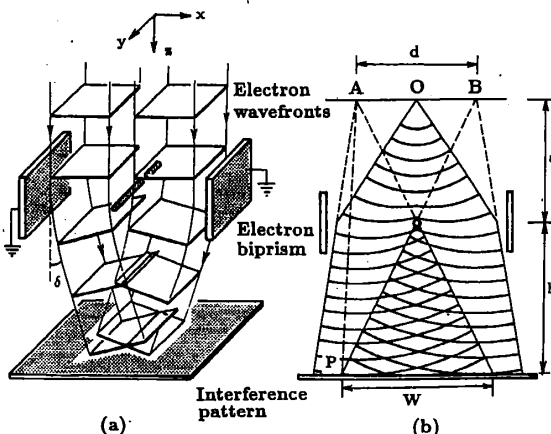


図3. Möllenstedt-Dücker型電子線バイプリズム。

3.1. 電子線ホログラフィ顕微鏡

上述の電界放射電子銃と電子線バイプリズムを透過型電子顕微鏡に取り付けると、電子線ホログラフィ顕微鏡となる(1978年、外村彰)。その電子光学系を模式的に図4に示す。電子銃から出た電子波はコンデンサーレンズではほぼ平行ビームになる。ビーム開き角 $\beta \sim 10^{-8}\ \text{rad}$ なので(3)式より横コヒーレンス長は $300\ \mu\text{m}$ にもなり、ほとんど平面波と見なせる(加速電圧 $100\ \text{kV}$ で波長 $\lambda \sim 0.003\ \text{nm}$)。つまり、入射電子波の波面は横方向に $300\ \mu\text{m}$ も広がっているため、その一部のみが試料(図4で小さい矢印で示されている)を照射する。その試料を透過した電子波が「物体波」となる。この波は試料によって位相が変化されているので、もはや平面波ではない。入射波のうち、試料を照射しない部分はそのまま平面波の形で透過して「参照波」となる。物体波と参照波がそれぞれバイプリズム・ワイヤの左側と右側を通過して、対物レンズの像面上で重畳されて干渉し、試料の像に重なって干渉縞パターンができる。これを、拡大レンズ系で写真フィルム上に投影する。これが「ホログラム」である。物体波の波面の形、つまり位相分布が干渉縞の曲がりとして試料の拡大像とともに記録されている。このホログラムを計算機で画像処理して容易に波面の等高線(等位相線)分布図に直せるので、電子波の位相分布を求めることができる。このように電子の波動関数の位相は実際に観測可能な量なのである。もちろん、直接観測できるのは干渉縞(つまり強度)分布という波動関数の絶対値の2乗であるが。

3.2. 電子波の位相情報

さて、物体波の位相にはどんな情報が含まれているのだろうか? ここでお待ちかねのSchrödinger方程式;

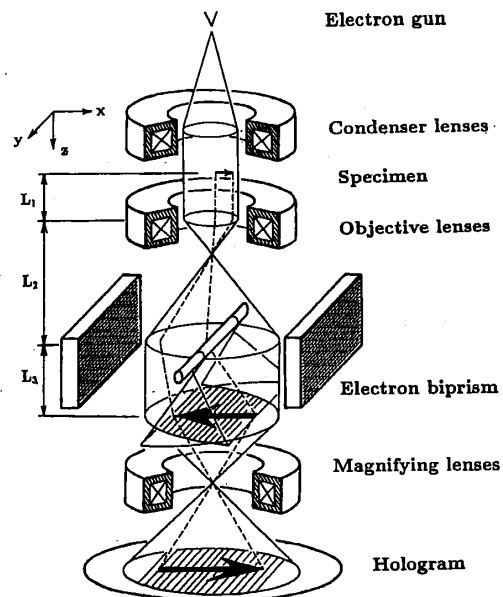


図4. ホログラフィー電子顕微鏡内の電子光学系。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r}, t) = \left\{ \frac{1}{2m} \left(\frac{\hbar}{i} \vec{\nabla} + e\vec{A} \right)^2 - eV \right\} \Psi(\vec{r}, t) \quad (5)$$

この解 Ψ は、電磁場の無い場合の自由電子の方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi_0(\vec{r}, t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 \Psi_0(\vec{r}, t) \quad (6)$$

の解 Ψ_0 を使って、WKB 近似の範囲内で

$$\Psi(\vec{r}, t) = \Psi_0(\vec{r}, t) \cdot \exp\{i\phi(\vec{r})\} \quad (7)$$

と書ける。ここで、位相 $\phi(\vec{r})$ は

$$\phi(\vec{r}) = -\frac{e}{\hbar} \int (V \cdot dt - \vec{A} \cdot d\vec{r}) \quad (8)$$

積分は考えている波面素の進路に沿って行なう。

つまり、平面波であった入射電子波の位相は電磁ポテンシャルによって変化を受けるのである。だから、電子波の位相分布が測定できたなら、電場・磁場そのものの分布を電子顕微鏡と同じ空間分解能で求められる。

例えば、図5(a)のような円錐台の形をした非磁性体の試料を電子波が透過したらどうなるだろうか？ path 1 と path 2 で示される二つの波面素の間の位相差 $\Delta\phi$ は、(8)式より

$$\Delta\phi = -\frac{e}{\hbar} \left\{ \int_{\text{path 1}} V dt - \int_{\text{path 2}} V dt \right\} \quad (9)$$

ここで、静電ポテンシャル V は試料の内部のみに存在する (平均内部ポテンシャル $-V_0$) ので、

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} V_0 \cdot \Delta\tau \quad (10)$$

ここで、 $\Delta\tau$ は試料を通過する時間で、試料の厚さ d と電子波の群速度 v を使って $\Delta\tau = d/v$ 。よって

$$\Delta\phi(x, y) = \frac{e}{\hbar} V_0 \frac{d(x, y)}{v} \quad (11)$$

つまり、透過電子波の位相変化の分布 $\Delta\phi(x, y)$ は試料の厚さ分布 $d(x, y)$ 、つまり試料の立体形状を反映しているのである。だから波面の等高線を描けば、それは試料の凹凸の等高線になる。その例を図6に示す [3]。ミクロとマクロの違いはあるが、物体の3次元形状を記録できるという特徴は光のホログラフィと同じである。

光のホログラフィとの違いは、電子が電荷を持っているので、電子線ホログラフィでは磁場の観察ができることである。図5(b)に示すようなリング状の磁石 (全磁束量 Φ) を考えてみよう (簡単のために磁石の厚さは無視する)。この試料に電子波を照射する。前と同様に、path 1 と path 2 で示される二つの波面素の間の位相差 $\Delta\phi$ は、(8)式より

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} \left\{ \int_{\text{path 1}} \vec{A} \cdot d\vec{r} - \int_{\text{path 2}} \vec{A} \cdot d\vec{r} \right\} \quad (12)$$

path 1 と path 2 の出発点と終点は無限遠方にあるとすると、(12)式は

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} \oint \vec{A} \cdot d\vec{r} \quad (13)$$

ここで、積分は path 1 と path 2 で決められる閉経路の

周回積分である。Stokes の定理と $\text{rot } \vec{A} = \vec{B}$ より

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} \int \vec{B} \cdot d\vec{S} \quad (14)$$

磁束密度の面積分は、path 1 と 2 からなる閉経路に囲まれた領域を貫通する磁束 Φ そのものになるので、

$$\Delta\phi = \frac{e}{\hbar} \Phi = 2\pi \frac{\Phi}{(h/e)} \quad (15)$$

つまり、図5(b)のリング磁石を透過した電子波の波面は図のような円錐台となり、この波面の等高線 (等位相線) を 2π 間隔で描いたならば、(15)式より、それはとりも直さず $h/e = (4.1 \times 10^{-15} \text{ Wb})$ 単位の磁束線 (磁力線) 分布図となるのである。

磁場中を電子が通過すると Lorentz 力を受けて進路が曲げられる、とは電子の粒子描像での説明である。波動像に立つと、もはや "波に働く力" など意味をなさない。どう説明すれば良いのか？ 図7に示すように、無限長のソレノイド・コイルが作る磁場のように限定された領域だけに磁束が集中している場合を考える。上述のように、磁束の両側を通過した電子波の波面は平面波のままだが、一方で位相が進み、他方で遅れるので、位相差 $\Delta\phi$ が生じる。磁束の両側の波面は連続的に繋がっている

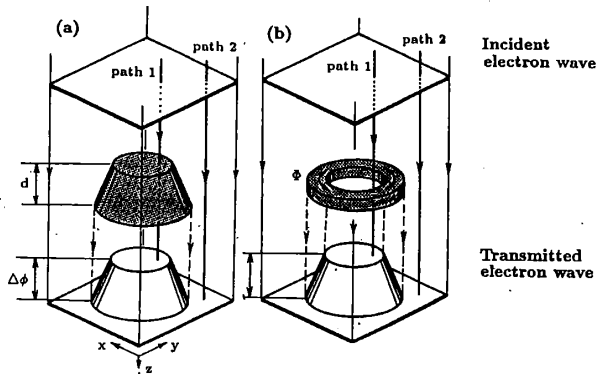


図5. 試料による電子波の波面の変化 (a) 非磁性体 (b) リング磁石。

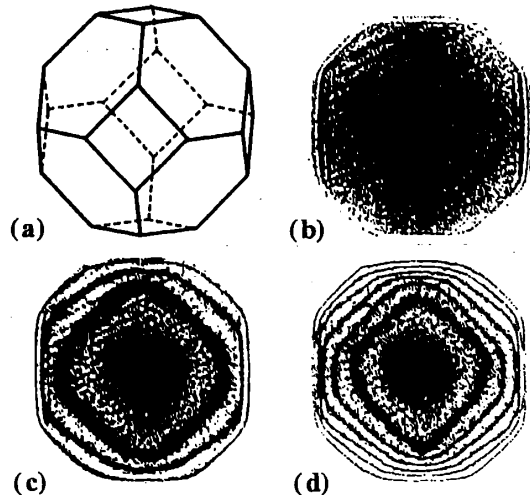


図6. (a)直径約180 nmのBe 微粒子の立体形状、(b)通常の電子顕微鏡鏡象、(c)干渉顕微鏡鏡象(位相間隔が 2π)、(d)位相間隔が π [3]。

講義ノート

るので、磁束の中を通過した波面は図示のように傾いている。電子の進行方向は波面に垂直なので、波面が傾くということは進路が曲げられることを意味している。つまり、波動像では力が働いて進路が曲げられるのではなく、位相変化をうけて波面が傾く（磁力線を軸に回転することによって進路が曲げられるのである。この場合も波面の等位相線分布図を描けば、磁力線分布を表すことになる。

マイクロな磁場分布の観察例を図8に示す。フロッピーディスク等に用いられるCoCr薄膜に、図8(a)のように磁気ヘッドで磁気記録された試料を観察した[4]。1ビットの情報"0"と"1"を磁化の向き(上下)で記録しているため、垂直磁気記録方式と呼ばれるものである。

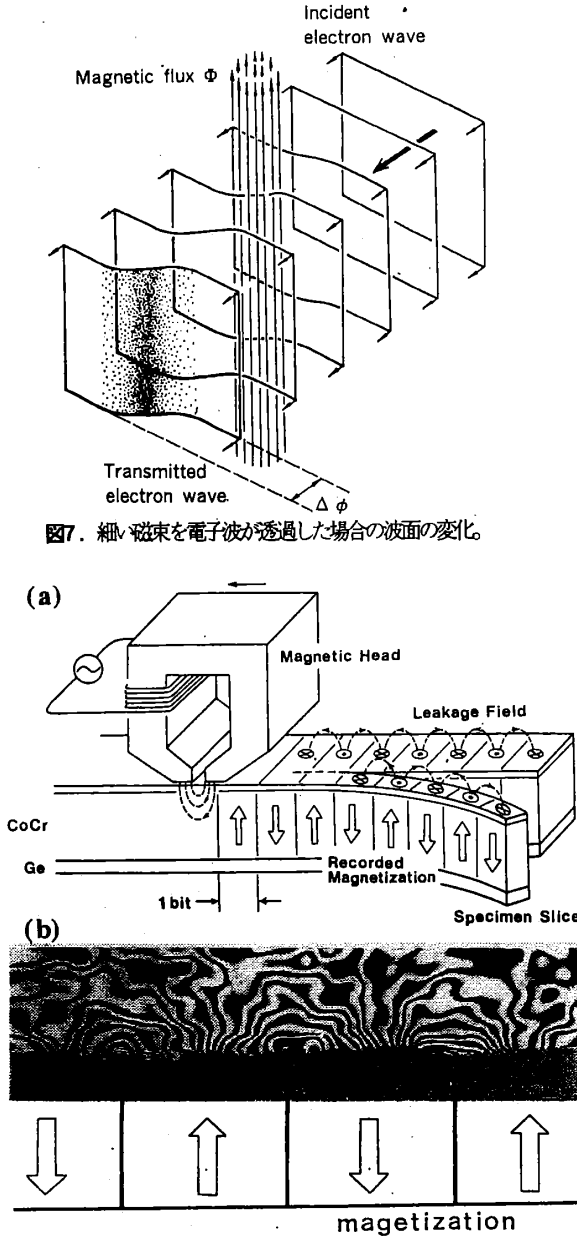


図8. (a)垂直磁気記録、(b)干渉顕微鏡像(位相間隔 $\pi/36$)($h/72e$ 単位の磁束線分布)[4]。1ビット長は127nm。

図(b)の干渉縞が、CoCr薄膜表面から洩れ出た磁場の磁力線を表している。計算機による画像処理によって、この場合の干渉縞は $\pi/36$ の位相間隔で描かれているので、縞1本が $h/72e$ の磁束線となっている。このように、真空中に浮遊する磁場をnmオーダーの空間分解能で可視化できるのである。小学生の頃、馬蹄型磁石の磁場分布を画用紙の上にまいた砂鉄で観察したように。

3.3. 超伝導体表面上のフラクソンの観察

電子線ホログラフィによるマイクロな領域の磁場観察の別な例として、超伝導体を貫通して表面に出てきた磁束(量子化磁束, fluxon)の観察を紹介しよう[5]。

超伝導は電気抵抗の消失現象として発見されたが、その本質は特異な磁気特性に現れている。マイスナー効果が破れて超伝導体を磁束が貫通すると、その磁束は $\Phi_0 (= h/2e = 2 \times 10^{-15} \text{ Wb})$ 単位に量子化され、その量子化単位は物質に依らない普遍定数のみで表される。この量子化単位の絶対値やフラクソンの内部構造は超伝導のメカニズムの本質と密接に関わっている。さらにフラクソンはその動的な振舞いを通して超伝導輸送特性を支配しており、また、超伝導コンピュータ(磁束量子パラメトロン等)の情報担体の単位として利用されている。ここでは金属超伝導体の鉛を観察試料とした。

第2種超伝導体に(1-D)Hc1 (Hc1は下部臨界磁場、Dは反磁場係数)以上で上部臨界磁場Hc2以下の磁場を印加すると、Abrikosovが予言したように微視的な領域が常伝導状態になり、磁場はその領域をフラクソンの形で貫通し(混合状態)、それが周期的に並んで「磁束線格子」を作る。一方、鉛のような第1種超伝導体に(1-D)Hc以上でHc (Hcは臨界磁場)以下の磁場を印加すると巨視的な大きさの常伝導状態の領域が出現し、その領域を磁束が束になって貫通する(中間状態)。LandauのLaminar構造である。しかし、この区別は超伝導体がシリルクの場合、つまりその厚さがコヒーレンス長に比べてはるかに大きい場合にのみ成り立つ。第1種超伝導体でも十分に薄い薄膜になると、中間状態ではなく混合状態となることがTinkhamによって予言され、実験で確認されている。これは、薄膜では、磁場が一樣になろうとするエネルギーの方が、超伝導領域と常伝導領域との境界の界面エネルギーより大きくなるため、磁束が大きな束となるよりフラクソン Φ_0 の磁束線(single-quantum flux lines, SQF, 単一磁束量子線)となって一本一本バラバラに分布するほうが安定になるからである。さらに、Lasherは第1種超伝導体薄膜の膜厚が厚くなると、フラクソンで分布するよりも、 Φ_0 の数倍の磁束がまとまって一本の磁束線(multi-quantum flux lines, MQF, 多重磁束量子線)を作って分布したほうが安定であると予言し、定性的ながら

Bitter 法によって確認されている。さらに膜厚が厚くなると、有限の大きさの常伝導領域がスポット状にできて多重磁束量子線がそこを貫通するようになる (Goren モデル)。もっと膜厚が厚くなるとバルクで見られる Laminar 構造となる。このように第 1 種超伝導体は膜厚および印加磁場に依存して様々な磁束構造をとる。

電子線ホログラフィ観察のための電子光学系を図9に模式的に示す。この顕微鏡の中で鉛薄膜 ($T_c=7.2\text{K}$) に直角に磁場を印加しながら 4.5K まで冷却し、超伝導状態にして量子化磁束を作る。これに電子波を照射する。試料近傍を透過した電子波の波面は、鉛の表面から真空中に湧き出した量子化磁束によって図示のように歪められる。つまり、鉛膜表面近傍では局所的に集中した磁束によって電子波の位相が急激に変化するが、鉛膜から遠ざかると磁場は一樣に拡がって分布するため電子波面が一樣に傾く。鉛膜近傍を透過して量子化磁束の情報を持った電子波面 (物体波) と、その領域から $10\ \mu\text{m}$ 程度離れた領域を透過する電子波面 (参照波) とを電子線バイプリズムで分割し、重畳・干渉させてホログラムを作る。これを画像処理して位相間隔 π の干渉縞分布 (干渉顕微鏡像) にする。そうすると、これはフラクソンの分布図となる。

図10では一本の干渉縞が一本のフラクソン Φ_0 に相当する磁束線を表している。鉛膜厚 d が $0.2\ \mu\text{m}$ の場合 (図10 (a)(b)(c))、印加磁場の強さに依らず磁束がフラクソンになって超伝導体を貫通しているの、これは SQF (単一磁束量子線、混合状態) 構造になっている。ところが、膜厚が $1.0\ \mu\text{m}$ になると (図10 (d)(e)(f))、 Φ_0 の数倍の磁束が束になって超伝導体表面の一点から湧き出ている。これは MQF (多重量子磁束線) 構造である。膜厚が $1.7\ \mu\text{m}$ の場合 (図10 (g)(h)(i)) では、膜厚 $1.0\ \mu\text{m}$ の鉛と同様に、数本の磁束量子線が束になって超伝導体を貫通しているが、その根元が点状ではなく、有限の幅を持っている。これは NS (常伝導スポット) 構造と思われる。このように、図10の観察結

果は各磁束構造の違いを明瞭に示している。

図11(a)は膜厚 d が $0.2\ \mu\text{m}$ の鉛薄膜に $3.7\ \text{Oe}$ の磁場を印加した時に現れたフラクソンである。破線は Ginzburg-Landau 方程式を Clem 模型を用いて解いて計算した磁束線分布を示している。観察された磁束量子の磁場分布と計算結果は定性的には一致している。図11(b)は膜厚 d が $1.0\ \mu\text{m}$ の鉛薄膜に $5.0\ \text{Oe}$ の磁場を印加した時に現れた多重磁束量子線 (Φ_0 の4倍) である。計算で求めた磁束線分布 (破線) と良く一致している。図11(c)は膜厚 d が $1.7\ \mu\text{m}$ の鉛薄膜に $12.2\ \text{Oe}$ の磁場を印加した時に現れた量子化磁束 (Φ_0 の4倍) である。この場合は上述の如く NS 構造となっている。破線は直径約 $0.8\ \mu\text{m}$ の円形の常伝導領域ができていないと仮定して計算した磁束線分布であり、観察結果とはほぼ一致している。

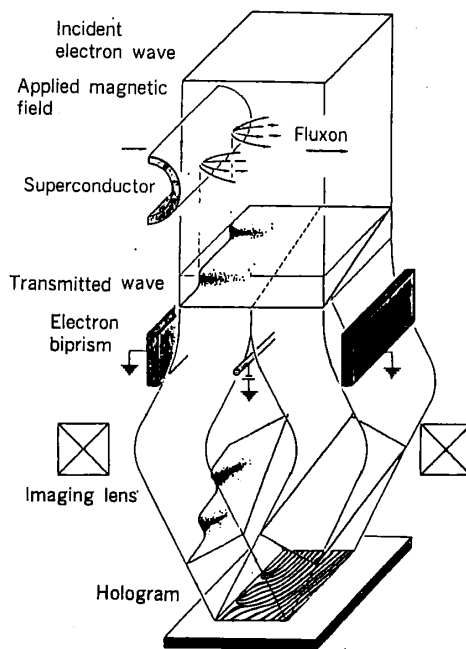


図9. ホログラフィ電子顕微鏡内での電子波の変化を表す模式図。

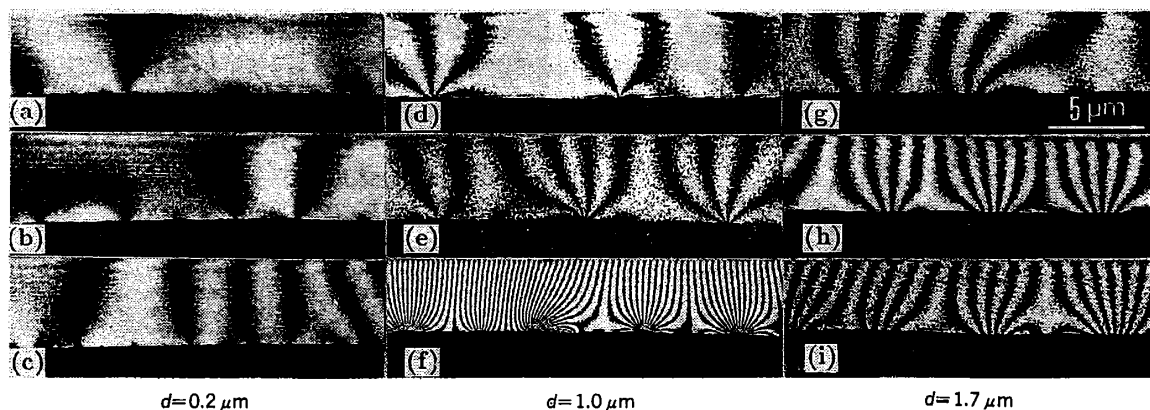


図10. 超伝導鉛薄膜を貫通して真空中に湧き出した量子化磁束を表す干渉顕微鏡像[5]。縞1本が $h/2e$ の磁束線である。鉛薄膜の膜厚 d 及び印加磁場を変化させた。(a) $1.6\ \text{Oe}$, (b) $3.7\ \text{Oe}$, (c) $5.0\ \text{Oe}$, (d) $3.7\ \text{Oe}$, (e) $5.0\ \text{Oe}$, (f) $18.3\ \text{Oe}$, (g) $7.5\ \text{Oe}$, (h) $12.2\ \text{Oe}$, (i) $18.3\ \text{Oe}$ 。

3.4. Aharonov-Bohm (AB)効果 [6]

Schrodinger 方程式(5)にはベクトルポテンシャルAと静電ポテンシャルVだけが入っており、磁場Bや電場Eは出てこない。古典的には、電子は自分のいる場所でのBやEから力を受けるはずだった(近接作用)。それでは、AやVだけが存在し、BやEが存在しない空間を作って、そこを電子を通過させるとどうなるのだろうか?そんな状況の例(磁場の例)を図12に示す。無限長のコイルに電子波を照射する。電子波がコイルに直接「触れる」のを防ぐために遮蔽板をおく。そうすると、磁場はコイルの中だけに存在するので、電子は磁場の全く無い空間を通過する。このとき、式(12)~(15)によって両側を通る電子波の間に位相差 $\Delta\phi$ が生じるので、コイル内の磁束の量に応じて干渉縞がシフトする。つまり、電子波は触れてもいない磁場の影響を受けるというのである。こんなことをAharonovとBohmが1959年の「量子力学におけるポテンシャルの重要性」と題する論文で予言した。(8)式が示すように、電子波の位相はベクトル・ポテンシャルによって変化させられるので、必ずしも磁場Bに「触れる」必要はない。ベクトル・ポテンシャル自体が観測可能な変化を引き起こすというのである。しかし、ベクトル・ポテンシャルとは電磁

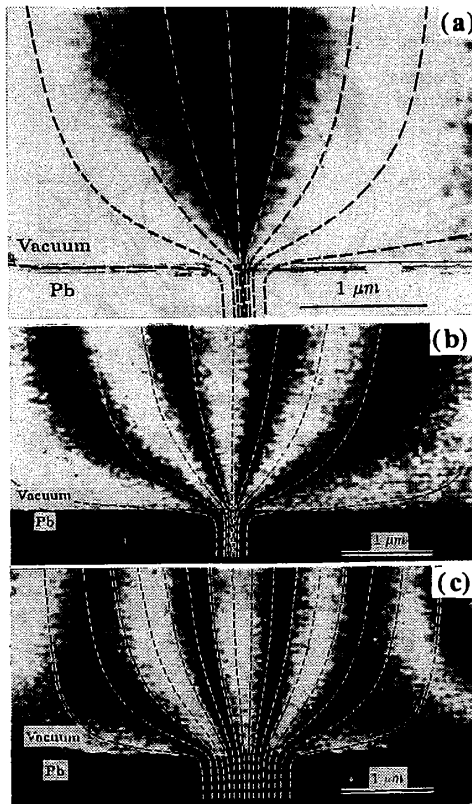


図11. (a)フラクソン(単一磁束量子線)。鉛薄膜の膜厚 d は $0.2 \mu m$ 、印加磁場 H は $3.7 Oe$ 。(b)多重磁束量子線。 $d=1.0 \mu m$ 、 $H=5.0 Oe$ 。(c)常伝導スポット(NS)構造での磁束線分布。 $d=1.7 \mu m$ 、 $H=12.2 Oe$ 。すべて $h/2e$ 単位の磁束線分布図。破線はGinzburg-Landau方程式から計算した磁束線分布[5]。

気学で $B=rot A$ という形で導入され、磁場を記述するための単なる数学的な道具であったはずで、それ自身は物理的実在ではなかったはず。(8)式は認めても、(8)式に出てくるAは、磁場Bのいわば代役として出ているにすぎないので、観測可能な効果をベクトル・ポテンシャル自体が引き起こすはずはない。それにゲージの取り方の任意性があるではないか-----。

AB効果の予言以来たくさんの実験的検証が試みられたが、それらは全て不完全であり、AB効果が真か否か判定できなかった。というのも、図12のようなコイルを作って電子干渉計に入れて実験しても(実際、Möllenstedtは直径数 μm のコイルを作った)、無限長のコイルではないので、コイルの外に戻り磁場が必ず存在し、電子線はその漏洩磁場の影響を受けてしまう。だから、干渉縞がシフトしたと言っても、それはベクトル・ポテンシャルの作用なのかどうかわからなくしてしまうからである。そこで、外村らは図13(a)のような試料を作った[7]。パーマロイで直径数 μ のリング磁石を作り、その周りを超伝導体のニオブでくるんだ。そうすると、磁場はパーマロイ内に閉じ込められ、超伝導体のマイスナー効果によって外には出られなくなる。この

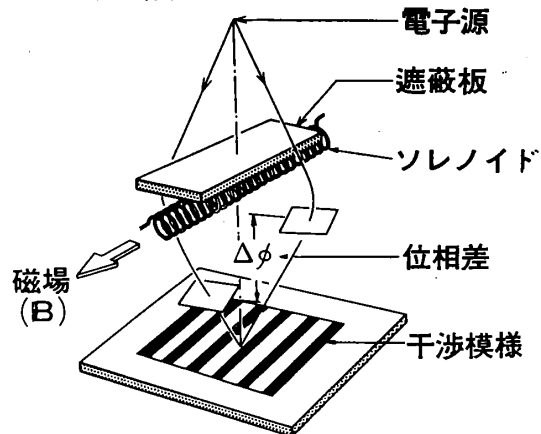


図12. 磁場型Aharonov-Bohm(AB)効果[6]。

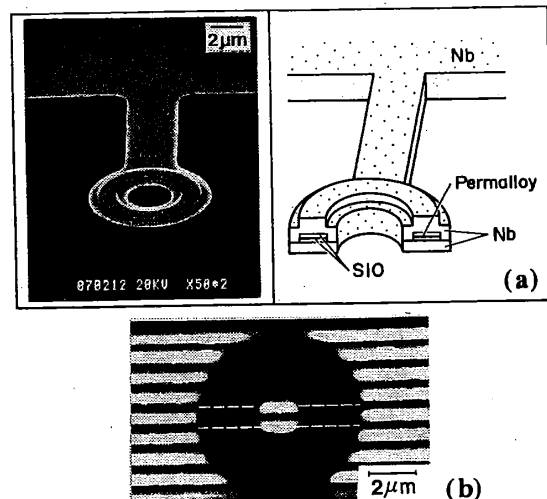


図13. AB効果の検証実験。(a)試料、(b)干渉縞鏡像[7]。

試料に電子波を照射すると、完全に磁場の無い空間を電子波は通っていくので、ベクトル・ポテンシャルだけの影響を受けるはず。この時の干涉縞の写真が図13 (b)であり、リングの穴と外で干涉縞がずれているのがわかる。これはリングの穴を通過した電子波面とリングの外側を通過した電子波面で位相差が生じていることを示している。つまり、AB効果は本当なのである。

§6で述べるように、このAB効果は真空中を走る電子波だけでなく、固体中の伝導電子でも見られことが発見され、メゾスコピック物理の起爆剤となった。

§4. 回折 --- 反射高速電子回折 ---

電子の波動性は結晶による回折現象で実証されたわけだが、それは結晶内の周期的な静電ポテンシャルVによる散乱である。だから、回折パターンから原子配列の周期性を、その回折スポットの強度解析から単位胞内の原子配列を、スポットのプロファイルから干涉領域の大きさや外形、モルフォロジーなどを求められる。ここでは反射高速電子回折 (RHEED) を中心に解説する。

4.1. 逆格子とRHEEDと表面超構造

図14は、RHEED装置の幾何学的配置と逆空間との関係を示す模式図である。回折現象を直観的に記述するにはEwald作図が使われる。波数ベクトル \mathbf{k}_0 の細く絞った電子ビームが試料表面に入射した時に生じる回折ビームの波数ベクトルの先端は、弾性散乱なので \mathbf{k}_0 を半径とするEwald球面上にのっている。今、図示のように散乱体(原子)が入射電子ビームに沿う方向に等間隔で一列に並んだものを試料とする。そのFourier変換は、この原子列に垂直な平面の列(逆格子面)となる(なぜFourier変換かという、第1Born近似だから)。その逆格子面とEwald球との交線は、図示のようないくつかの円になる。それらの円とEwald球の中

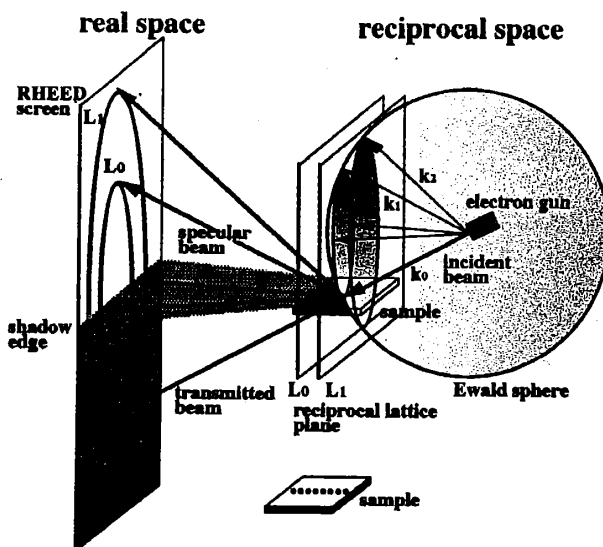


図14. RHEEDと波数空間。

心を結ぶベクトル $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \dots$ が回折電子ビームの波数ベクトルとなる。だから、Ewald球上での円がスクリーンで同心円のパターンとして見える。ただし実際のRHEEDパターンはshadow edgeより上の領域しか見えない。逆格子の原点(電子ビームの入射点)を通る逆格子面とEwald球との交線に対応したスクリーン上の半円を第0 Laueゾーン L_0 と言い、その外側の半円を第1 Laueゾーン L_1 と言う。

実際の結晶格子の表面は上述の一系列の原子列と、それを 90° 回した原子列との組合せとみなせるので、その逆格子は互いに直角に交わる平面列の交線、つまり、逆格子ロッドが規則的に並んだものになる。それとEwald球との交わりは点になり、それがスクリーン上の回折スポットになる。だから、それらのスポットは必ず図14に示したスクリーン上の同心の半円上に並ぶ。

図15(a)はSi(111)清浄表面からのRHEEDパターンである。第0 Laueゾーン L_0 と第1 Laueゾーン L_1 に強い回折スポットがでていますが、これがSiのダイヤモンド型結晶格子を回折格子と見たときの回折点で、基本格子スポットと呼ぶ。 L_0 と L_1 の間に6個の同心の半円状に細かいスポットが並んでいるが、これが 7×7 の表面超構造を表し、超格子スポットという。逆空間で $1/7$ の周期でスポットが現れるということは、実空間では、7倍の間隔の回折格子ができたことを意味する。

このように、エネルギーも運動量も全く同じ電子を1個ずつ次々に試料表面にあてると、ある電子はスクリーン上のある回折スポットに到着し、別な電子は別な回折スポットに到着するのである。それでは、一個一個の電子の行き先を決めているのは何か? 量子力学は、それぞれのスポットに到着する確率(つまり、スポットの強度)を教えてくれるだけで、個々の電子がどのスポット

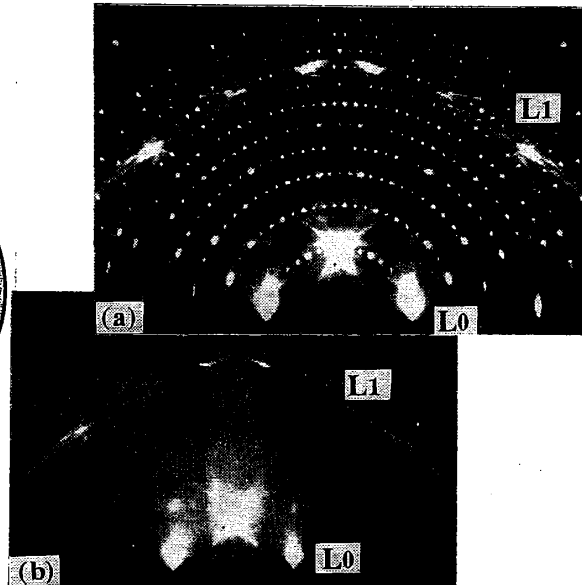


図15. RHEEDパターン, (a) Si(111)- 7×7 清浄表面 (室温), (b) 相転移した 1×1 (830°C)。

講義ノート

に到着するかは、神がサイコロをふって決めるのだそうだ。この状況は§ 2の干渉縞の形成過程と同じである。

図15(a)の試料を加熱して800℃程度にすると、RHEEDパターンは(b)のように変化する。超格子スポットが全て消え、基本格子スポットのみが残る。これを便宜的に1x1状態という。この1x1は温度を下げるともとの7x7状態に戻るので、可逆的な相転移(秩序・無秩序転移)である。7x7超格子スポットの強度の温度変化を測定すると、図16(a)のようになり、温度上昇過程と下降過程との間でヒステリシスが見られた。これは1次相転移を意味している[8]。

500℃程度の高温のSi(111)表面に金を1原子層程度蒸着すると、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 周期の表面超構造ができる。この表面も750℃程度で1x1になる秩序・無秩序相転移をする。このときの超格子スポットの温度変化は図16(b)のように、ヒステリシスが見られなかった。また、超格子スポットのプロファイル調べると、挿入図のように温度が上昇して相転移点に近付くとブロードになる。これは2次相転移に特徴的な臨界散乱であり、このスポット形状の解析から臨界指数を決定できる。

4.2. TRAXS と電子定在波

RHEED観察中には入射電子線によって試料表面でX線が励起され、表面から四方八方に放射される。超高

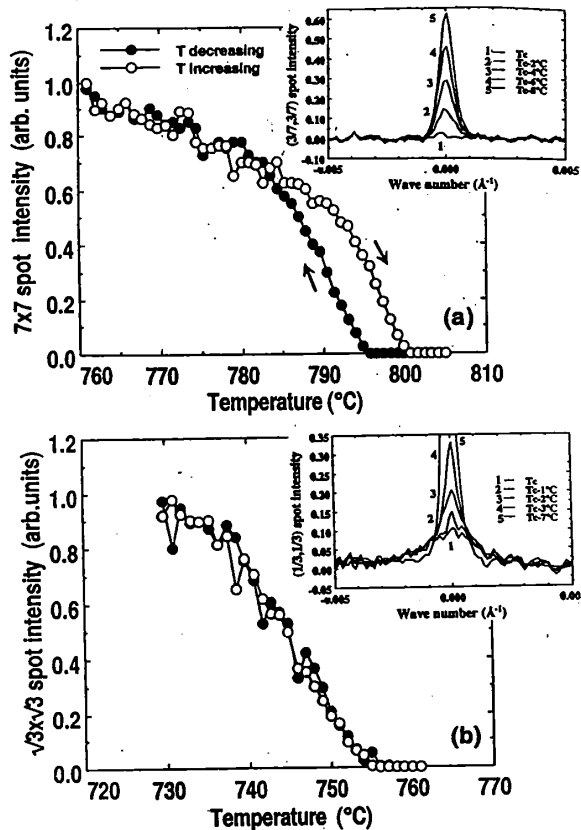


図16. 構造相転移でのRHEEDスポットの強度と形状の温度変化。(a) Si(111)-7x7 \leftrightarrow 1x1, (b) Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Au \leftrightarrow 1x1 [8]。

真空チャンバーにベリリウム窓を取り付けておくと、その方向に放射されたX線が通過して大気中に出て来る。大気中に設置したX線半導体検出器で検出・分光することができ、固有X線を検出・定量することによって表面元素の分析が可能となる。その実験装置の配置図を図17に示す。この時、X線取り出し角 θ_t をスリットで限定して測定すると、X線のエネルギースペクトルの形が著しく θ_t に依存して変化する[9]。図18はSi(111)7x7清浄表面上に銀が1原子層吸着した試料から得られたX線スペクトルである。制動放射による連続X線スペクトルの上にシリコン基板からのSiK線(1.74keV)と吸着した銀からのAgL α 線(2.98keV)、L β 線(3.15keV)の特性X線が検出されている。X線の取り出し角 θ_t を変化させて検出すると、各特性X線の強度が著しく変化する。この変化の様子を図19に示す。AgL線の強度は θ_t が約0.6度で最大値をとる。つまり、 θ_t を0.6度付近に設定すると、この時SiK線の強度が弱いので、選択的に表面第1原子層にある銀を検出することになる。この時の θ_t はAgL線のシリコンによる全反射臨界角である。つまり、一般的に言えば、表面元素から放射される特性X線を検出する際、その取り出し角を全反射臨界角近傍に設定すると表面検出感度が著

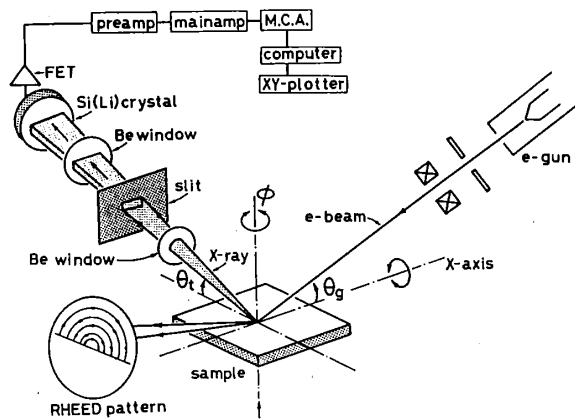


図17. RHEED-TRAXS [9]。

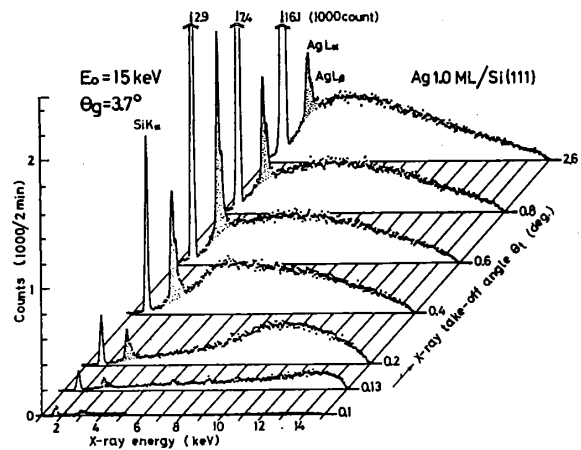


図18. TRAXSスペクトル(Ag1 ML/Si(111)) [9]。

しく向上するのである。この現象は他の元素でも確認されており、新しい高感度表面分析法となり、TRAXS

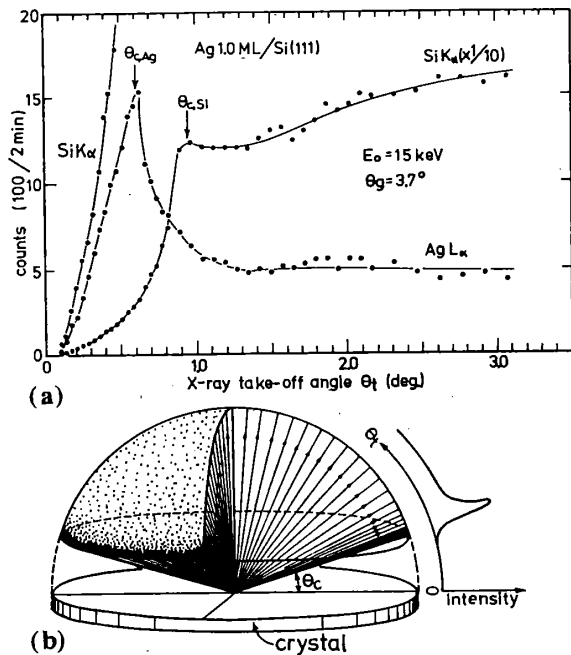


図19. (a) 特性X線強度の取り出し角依存性と、(b) 表面原子から放射されるX線フラックスの模式図[9]。

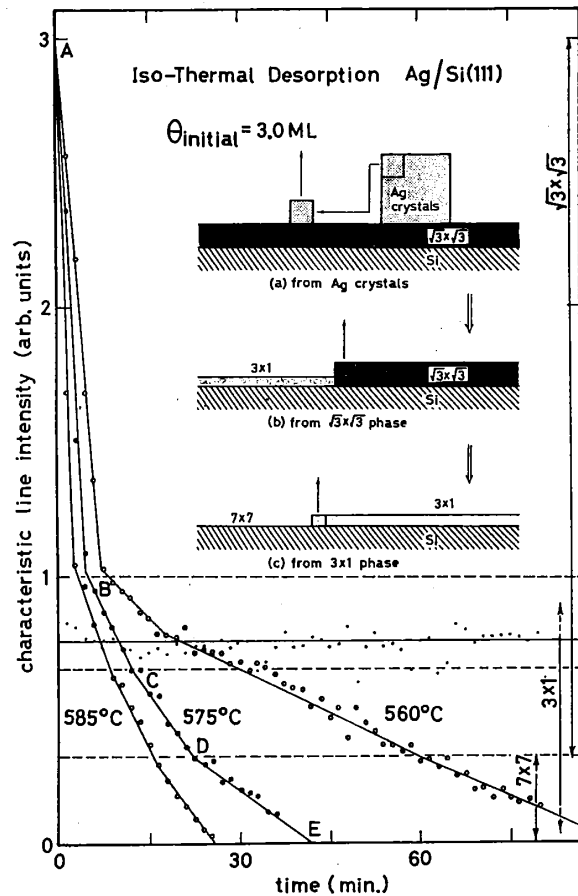


図20. Si(111)表面上のAgの等温熱脱離過程のTRAXS測定[10]

(全反射角X線分光法、Total-reflection-angle X-rays spectroscopy)と呼んでいる[9]。この現象のメカニズムは、放射されたX線の表面での透過・屈折、反射・干渉効果によって説明できる。

TRAXSによる表面組成分析の応用例として、熱脱離の実験を紹介しよう[10]。3原子層のAgをSi(111)表面に蒸着した後、400℃程度に基板を加熱すると、1原子層のAgが $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 周期の2次元層を形成し、残り2原子層に相当する量のAg原子はその層の上の3次元的な微結晶となる(Stranski-Krastanov状態)。この状態で温度を600℃程度の一定温度に保つと、銀原子がゆっくりと熱脱離する。この等温熱脱離過程をRHEED-TRAXSで観測した。図20はAgL線の強度変化を経過時間に対してプロットしたものである。

例えば、575℃に保持した場合、AgL線の強度は直線的に減少するが、被覆率が1.0、2/3、1/3原子層に相当するX線強度の点B、C、Dで直線の勾配が変わって屈曲点ができる。温度を変えると脱離速度(直線の勾配)は変化するが、屈曲点の位置は変わらない。この屈曲点の位置は、RHEEDパターンの同時観察から表面構造の変化に対応することがわかる。つまり、1原子層以上のAg原子が表面上に残っている段階での速い速度の脱離(点B以前)は3次元的なAg微粒子からの原子の蒸発に対応し、その後の脱離(点B以降)は $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造からのAg原子の蒸発に対応する。脱離速度の温度依存性を調べ、アーレニウス作図からそれぞれの構造に対応するAg原子の脱離エネルギーを求められる。

TRAXSでは単純に表面元素の量を測定できるだけでなく、構造解析にも利用できる。結晶表面に電子波が入射されると、多重散乱を繰返し、例えば、図21に示すような電子の波動場の定在波状態ができる。特に、定在波が表面1、2原子層のみに局在するような場合を表面波共鳴と呼ぶ。だから、注目している原子が定在波の節に位置する場合、その原子からのX線の励起は弱い。定在波の腹に位置する原子からのX線放射は強くなる。だから、電子波の定在波の周期をものさしにして注目原子の位置を測定できる。この方法で、Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -In表面(図22(a))のIn原子の吸着位置の高さが決められる[12]。図22(b)は、入射電子線の視射角 θ_g を変えながら、この表面から放射されるInL特性X線の強度をTRAXSで測定した結果である。 θ_g が1.4°、2.2°、3.1°、3.6°でピークが見えているが、この角度で電子波の定在波の腹がIn原子の位置に一致するのである。この手法はX線定在波法に似ている。

4.3. RHEED強度振動

1981年に表面上の原子層成長ともなってRHEED鏡面反射スポットの強度が振動する現象が見いだされ、その振動の周期が単原子層の成長に対応することが

講義ノート

明らかになって以来、この現象は成長速度や飛来原子の表面拡散距離の測定、エピタキシー成長の正確な制御にも利用されている。この現象の直観的な説明は、光の反射のアナロジーで与えられる。つまり、図23のように、初期表面は平坦なので電子線の反射率は最大であるが、成長を始めると表面上に2次元核が形成されて表面が荒れてくるため、電子線の反射率が下がり、表面の被覆率が0.5で最小値をとる。さらに、成長が進むと表面の平坦性は回復し、1原子層の成長が完了するときにほぼ初期状態に戻り、反射率が最大値に回復する。以

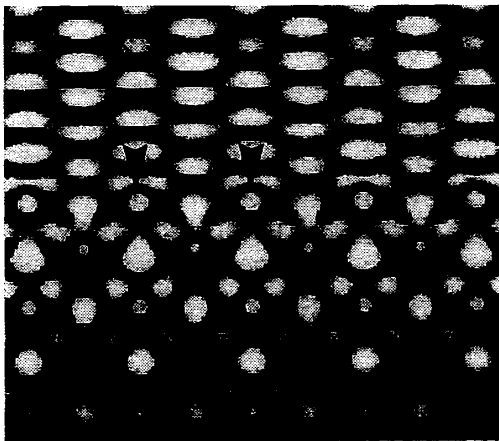


図21. 表面波状態でのRHEED電子波動場の計算[11]. Ni(011)表面に[100]方位で100keVの電子線を視射角24.6 mradで入射。矢印が最表面Ni原子で、それより上の領域が真空で、下が結晶である。

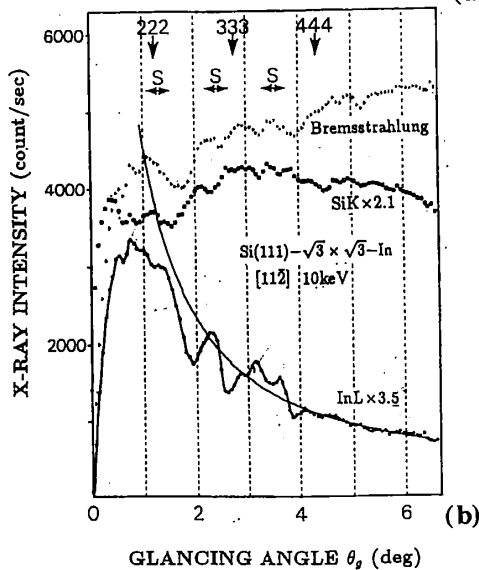
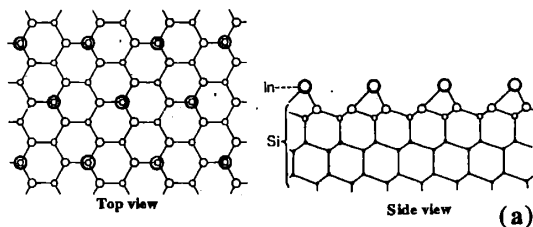


図22. (a) Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -In 表面の断面図。(b) In L線強度のRHEED電子線視射角による変化[12]。

後、この過程を繰り返すことによって鏡面反射スポットの強度が振動することになる。しかし、この単純なモデルでは以下に述べる強度振動の回折条件依存性を説明できない。RHEED強度振動現象の特徴のうち、1回散乱だけを考慮した運動学的回折理論で説明できる特徴もあり、また、多重散乱や非弾性散乱を考慮した動学的回折理論が必要な場合もある。

前述のように、表面波共鳴条件では電子の波動場が表面1、2原子層だけに局在するので、表面荒さにも当然敏感になっているはず。図24はSi(111)表面上のホモエピタキシー過程でのRHEED強度振動であるが、入射電子線の視射角を少しずつ変えて測定している[14]。番号2が表面波共鳴条件となっており、その時が振動振幅が最大となっている。その条件から外れると振動振幅が小さくなるが、振動振幅の減衰はむしろ遅い。これらは表面波共鳴条件から外れると表面モルフォロジーに鈍感になることから定性的に説明できる。

図25はSi(111)-6x6-Au表面上に鉛を蒸着したときのRHEED強度振動で、やはり入射電子線の視射角を変えて測定した結果である[15]。通常の1原子層成長を周期とする振動に加えて、2原子層成長を周期とする

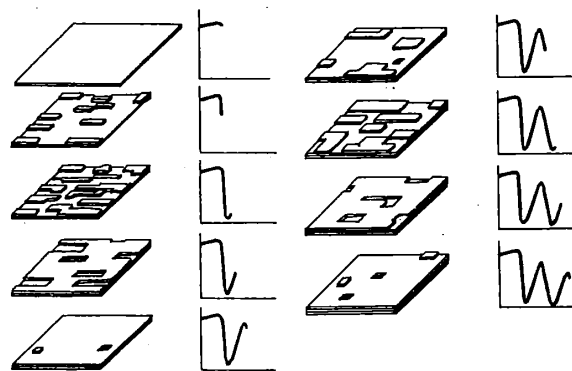


図23. 表面上の原子層の成長に伴う表面荒さの変化とRHEED鏡面反射スポットの強度の変化[13]。

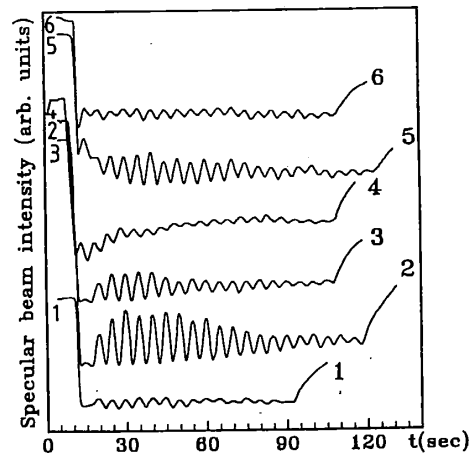


図24. Si(111)表面上のホモエピタキシー過程でのRHEED強度振動の視射角依存性[14]。

振動が観測されている (特に視射角が 1.03° , 2.24° , 3.44° ではっきりと見える)。これは量子サイズ効果で説明されている (回折理論の言葉で言えば表面波共鳴に他ならない)。つまり鉛原子層の厚さが、入射電子線の表面に垂直方向の波数ベクトル k_z に対応する波長 λ_z の $1/2$ の整数倍に一致したとき、入射電子波は鉛原子層内で定在波を作るので、電子線の反射率を著しく変えることになる。しかし、どう変化させるかは動力学的計算をしなければわからない。

§ 5. トンネル --- 走査トンネル顕微鏡 ---

走査トンネル顕微鏡 (STM) によって、表面上の個々の原子を実空間で観察できるようになった。しかし、実際に STM で見えているのは原子そのものではなく、電子状態の分布像である。電子密度の高い領域が原子位置に対応する場合のみ STM 像が原子像に一致する。しかし、例えば Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag 表面では、STM 像での輝点が原子に対応せず、理論計算との照合が不可欠となる。ここでは電子の波動性に関連した表面電子定在波と Quantum Corral の話題を紹介する [16]。

試料に対して探針に正のバイアス電圧 V_t を印加すると、試料内のフェルミ準位 E_F と $E_F - eV_t$ の間の占有状態の電子がトンネル電流 I_t に寄与するので、近似的に

$$I_t \propto \int_{E_F - eV_t}^{E_F} (\text{局所電子状態密度}) dE \quad (16)$$

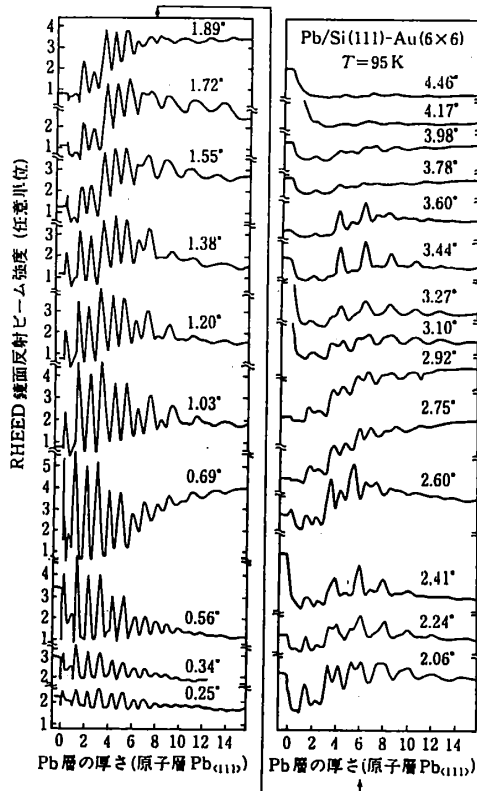


図25. Si(111)-6x6-Au 上でのPb 蒸着中でのRHEED 強度振動の視射角依存性[15]。

だから、トンネル電流をバイアス電圧で微分すれば (トンネルコンダクタンス dI_t/dV_t)、フェルミ準位より eV_t だけ低いエネルギー準位での局所電子状態密度を測定できることになる。この測定を探針を走査させながら行えば、各エネルギー準位の状態密度の分布像を撮れる。これを走査トンネル分光 (STS) という。同様にバイアス電圧の極性を逆転すれば、非占有状態の STS 像も得られる。バイアス電圧が十分小さい場合、(16) 式は

$$I_t \propto (E_F \text{ での局所電子状態密度}) \cdot V_t \quad (17)$$

となり、微分しなくても近似的にフェルミ準位での局所状態密度そのものが STM 像になっているとみなせる。

図26は、Cu(111)表面のSTM像 ($V_t=0.1V$) である [17]。原子像が見えていないのは分解能が悪いからではなく、フェルミ準位近傍の電子状態密度を検出しているため、その状態は原子に局在せず、ひろがっているためである。Cu(111)表面には表面に極在した電子状態が存在し、自由電子的な2次元電子系が表面にできている。断崖絶壁のように見えるのが単原子層ステップで、それに平行に数本の縞模様が見える (間隔が15 Å程度)。これは、表面の電子がステップ端でのポテンシャル障壁によって反射され、その反射波と入射波とが干渉してできた定在波である。また、図26では、点欠陥による電子の散乱に起因する同心円状の定在波もあちらこちらで見られる。このような定在波は、色々なバイアス電圧での STS 像にも見られ、そのバイアス電圧 (エネルギー準位) と定在波の周期の逆数 (波数) の関係から、表面電子状態の分散関係を求めることもできる。

表面上に吸着した原子も散乱中心となるので、吸着原子を並べれば散乱ポテンシャル障壁を作る。図27 [18]は、Cu(111)表面上に48個の鉄原子を円形に並べたもののSTM像である ($V_t=0.01V$)。蒸着した個々の原子を表面上の任意の位置に動かすというのは原子マニピュレーションというテクニックで、STM装置の別な画期的な利用法であるが詳しくは他の解説にある [19]。図27で尖った小さな山が一個一個の鉄原子であり、

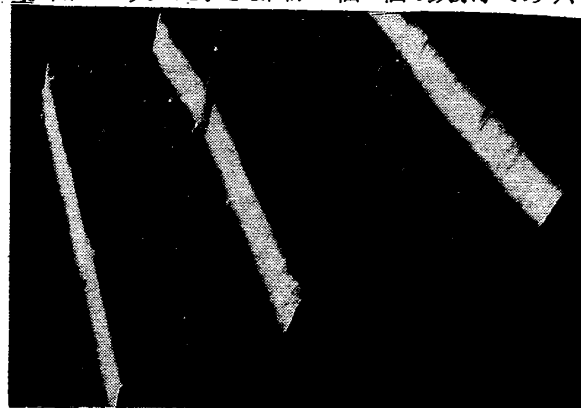


図26. Cu(111) 清浄表面のconstant-current 像 ($V_t=0.1V$, $I_t=1.0nA$)、温度4.2 K [17]。

講義ノート

それらが作る円の中に同心円の波が見える。これが円形のポテンシャル障壁に閉じ込められた表面電子波の定在波である。まるで丸い池の水面の波のように見える。ここで一句---「古池や 蛙飛び込む 水の音」----。4.2 Kの極低温の静かな電子の池は、蛙が飛び込まなくても波が立っている。なぜなら、池の中に閉じ込められた電子は不確定性原理からその中で動き回っているからである。電子波を閉じ込めたというので、これを Quantum Corral (量子囲い柵)と呼んでいる。この解析には初等量子力学の演習問題で出てくる円形の井戸型ポテンシャル内に閉じ込められた電子の波動関数の解析がそのまま使える。このようにSTMでは電子波そのものまで可視化できる(この場合は局所状態密度の変化という形で)。

§ 6. 固体表面近傍の電気伝導と電子波

固体の電気伝導現象において、上述の電子の波動性や表面構造依存性などが顕著に見られる例を紹介する。

6.1. ナノスコピック構造と電子波

Webbら[20]は微細加工技術を駆使して、図28(a)に示す金のリング(直径784 nm, 幅40 nm, 厚さ38 nm)を作り、その電気抵抗を四端子法で測定した。その結果、図(b)に示すように、リングの面に垂直に印加した磁場Hの強さを変えると電気抵抗が振動した。その振動の周期は76 gaussであり、これを磁束に換算すると、金のリングの中を貫通する磁束が h/e に相当することがわかった。伝導電子はリングの入り口で二手に分かれ、右側の経路を通った伝導電子の波と左側を通った電子波とがリングの反対側の出口で合流するときに干渉し、両者の位相差によって強め合ったり、弱め合ったりするので、その結果電気抵抗が変化するのである。ただし、二つの波の位相差は§3.4で述べたAB効果によって、リング内を貫通する磁束量によって変化するので、印加磁場の強さを変化させると、合流点での干渉がconstructiveになったりdestructiveになったり周期的に変化するのである。この実験は微小な固体内の伝導電子の波動性を直接的に示し、また、固体内での不純物などによる多数の散乱を経ても位相情報を失わず、干渉

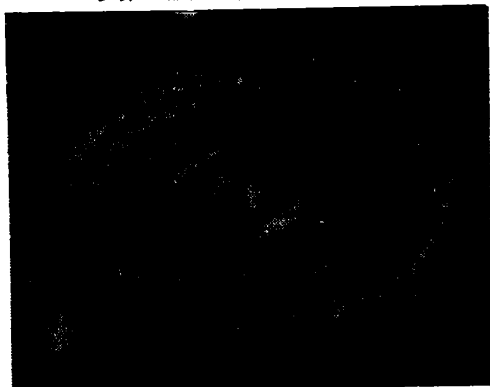


図27. Quantum Corral [18].

性を保つということを示したもので、その後のメゾスコピック物理ブームのきっかけとなった。

固体内の伝導電子によるYoungの二重スリット型の干渉実験も行われている[21]。それは、GaAsとAlGaAsとのヘテロ接合界面にできる2次元電子ガス(2DEG)を利用する(図29)。2DEGはAlGaAsの上で作られた金属電極に印加する電圧によって制御できる。injectorとcollectorの間に図示のような二重スリットに相当する二つの穴を持つ電極を置く。injectorの細い穴から出てきた電子波は球面波となって広がり、二重スリットの二つの穴を通過してcollectorの入り口まで到達する。だから、collectorの入り口での電子波の干渉がconstructiveなのかdestructiveなのかによってinjectorとcollector間の電気伝導度が変化する。その干渉状態を変えるには、磁場型AB効果と同じように磁場を印加するか、または、二重スリットの片方の穴の近くに位相制御用のゲート電極をおいて、その領域だけで位相速度を変化させれば可能となる。実際、この方法によって静電型AB効果に似た振動を観測している。

6.2. 表面構造と電気伝導

上述のように固体内の伝導電子のフェルミ波長程度の微細構造を作ると、電子の波動性が顕著に現れ、電気伝導度などの巨視的な測定にかかる物性に重大な影響を与える。それでは、もっとミクロな、原子レベルでの構造の変化は、電気伝導にどう影響するのだろうか?例え

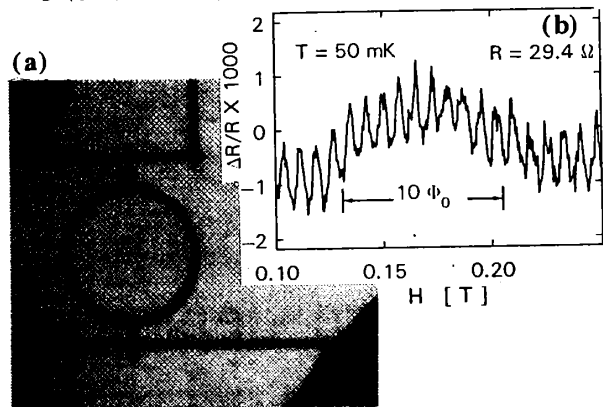


図28. 常伝導金属リングでのAB効果[20].

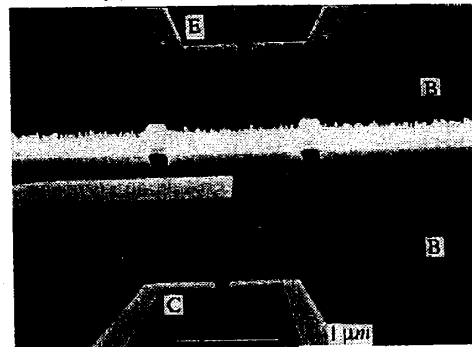


図29. GaAs/AlGaAsヘテロ接合界面に形成される2次元電子ガスを使ったYoungの二重スリット干渉実験[21].

ば、表面の1、2原子層のみに形成される表面超構造は電気特性にどのような影響を及ぼしているのだろうか？表面超構造が違えば、電子状態も変わっているのだから、電気伝導も異なるはず。

ここでは、Si(111)-7×7 清浄表面および Si(111)-√3×√3-Ag 表面を比較しながら紹介しよう。図30に示すように、この二つの表面の原子配列構造も電子状態もほぼ完全に解明されている。前者は dimer-adtom-stacking fault 構造でダングリリング・ボンドが unit cell 内に19個あるが、後者は honeycomb-chained trimer 構造で、ダングリリング・ボンドは吸着している銀原子によって全て飽和されている。よって、前者はダングリリング・ボンドに起因する金属的な表面電子状態

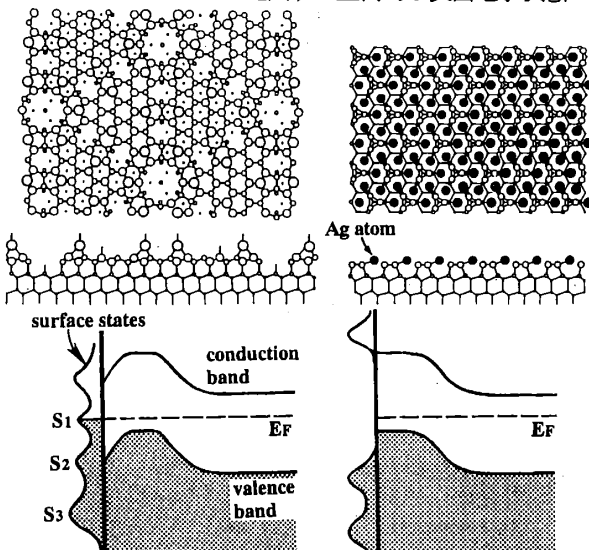


図30. Si(111)-7x7 清浄表面と Si(111)-√3x√3-Ag 表面超構造の原子配列と電子状態模式図、RHEED pattern

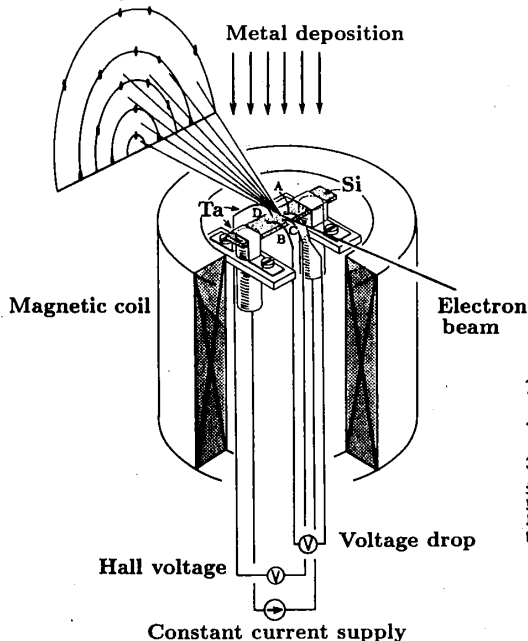


図31. 電気抵抗・ホール係数測定用RHEED 試料ホルダー。

Si sバンド・ギャップ内に存在し（金属的な表面）、フェルミ準位はその状態にピンニングされ、表面空間電荷層は必ず空乏層になる。一方、√3x√3-Ag 表面は、半導体的な表面なのでフェルミ準位のピンニング効果は無いが、シリコン・バルク内の不純物の再分布によって表面空間電荷層はいつも p 型となる。

表面超構造を制御しながら、超高真空中で電気抵抗を測定するという実験の報告は全くといっていいほど少ない。図31は、RHEED観察、金属蒸着、高温加熱、4端子法による電気抵抗とホール効果の測定が可能な試料ホルダーで、これで電気伝導の表面構造依存性を調べた[22]。図32は、室温に保たれた(a)Si(111)-7×7 清浄表面および(b)Si(111)-√3×√3-Ag 表面にAgを蒸着し続けた過程での抵抗の変化である。(a)では、7×7パターンが消えるまで (Agの蒸着量が3原子層程度まで) 抵抗はほとんど変化しないが、その後Ag原子層の繊維構造パターンが現れてくると急激に減少し始める。この時、Agは層状に近い様式で成長し、その金属Ag島が繋がって伝導性の高いスーパーコレーション経路ができ始めたと解釈できる。それに対して(b)では著しく異なった振舞を示す。Ag蒸着開始直後に (Agの蒸着量がわずか0.1原子層程度で) 急激に抵抗が減少し、その後、穏やかに減少し続ける。この過程でRHEEDではAgの3次元核の生成を示す透過スポットが観察されたが、√3×√3表面超構造のスポットの強度はほとんど減少しなかった。これは、蒸着されたAg原子が容易に表面拡散して3次元核に取り込まれてしまい、√3×√3表面をほとんど覆わないためである。また、蒸発源のシャッターを閉じて蒸着を止めると、抵抗が急激に回復する。これは、蒸着されたAg原子の nucleation 過程に対応している。つまり、抵抗を下げる原因は、蒸着されたAg原子のうち、3次元Ag島に取り込まれる前に表面上を動き回っている孤立原子であり、蒸着を止めるとその孤立原子が速やかに3次元Ag島に取り込まれてしまうので抵抗が回復するのである。この現象は、図30の電子状態を考えると、蒸着されたAg孤立原子が負の電荷を持ち、アクセプターとして働いて、表面空間電荷層内の伝導ホールの濃度を増やした結果と解釈できる。この表面ではフェルミ準位がピンニングされていない

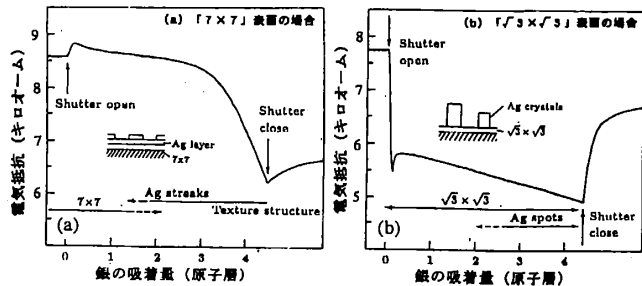


図32. Ag蒸着中のSiウエハの電気抵抗の変化(室温) [22]。(a) Si(111)-7x7 清浄表面、(b) Si(111)-√3x√3-Ag 表面。

講義ノート

ので、表面近傍でのバンド湾曲が微小な量の銀吸着によって引き起こされる。7x7 清浄表面では、フェルミ準位のピンングのためにバンド湾曲は殆ど変化しないと考えられる。Si(111)-5x2-Au 表面上に吸着したAu原子は正の電荷を持ち、ドナーとして働く。

上述の実験で、表面での電荷のやり取りと電気伝導との関係が表面超構造によって異なることがわかった。そこで、さらに直接的にそれを調べるため、電界効果の表面構造依存性を調べた。図33に示す試料ホルダーを用いた。各種の表面超構造をSi(111)ウエハに作った後、室温にもどす。その表面に鏡面研磨された厚さ0.3mmのBaTiO₃焼結体薄板を挟んでアルミ電極を押し付ける。このようにしてMIS(metal-insulator-semiconductor)構造を超高真空中で作った。このAl

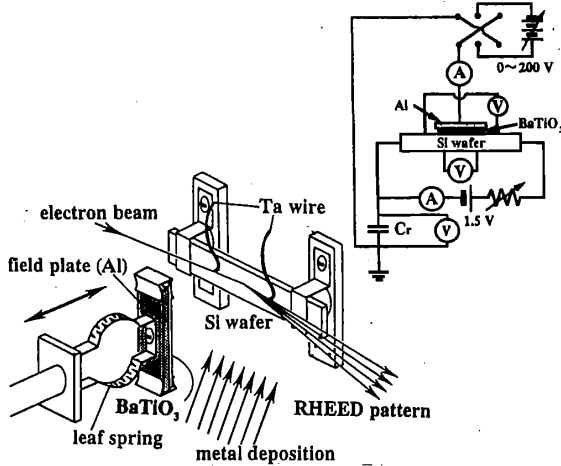


図33. 電界効果測定用RHEED試料ホルダー。

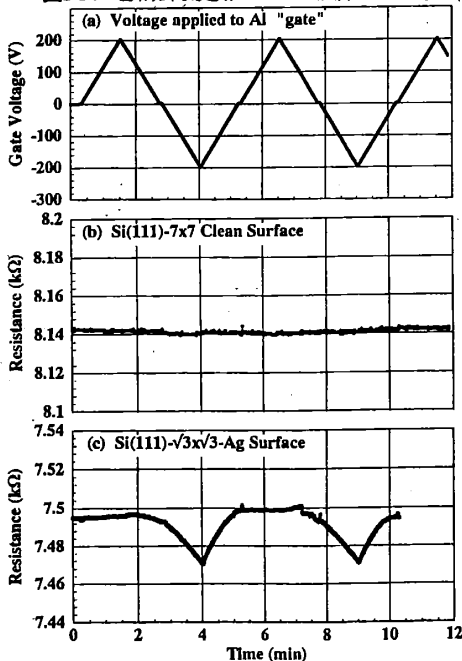


図34. 電界効果の表面構造依存性。(a)ゲート電圧の掃引、(b) Si(111)-7x7 清浄表面、(c) Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面

電極とSiウエハの間に電圧を印加してSi表面に電荷を誘起させる。このときのSiの表面に沿った電気伝導度の変化を測定した。測定結果を図34に示す。実験では、Al/Si間の印加電圧を-200Vから+200Vの間で時間にリニアにゆっくり掃引した。この間、Si(111)-7x7清浄表面では抵抗がほとんど変化しないが、Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面では、負の電圧をアルミ電極に印加した時のみ著しく抵抗が減少した。以上の結果は、7x7清浄表面が金属的な表面であり、フェルミ準位がダングリング・ボンド表面電子状態にピン止めされているが、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面はp型で、完全に半導体的な表面であることから説明できる。

§7. おわりに

伝導電子のフェルミ波長程度の寸法の微細構造で現れるメゾスコピック現象の研究は一段落という感がある。一方、原子レベルでの構造の制御が表面物理で行われつつある。しかし、その物性の研究はほとんどなされていない。メゾスコピック物理的な物性研究と表面物理的な構造制御を融合した「ナノスコピック物理」とでも呼ぶ領域が開かれるのではないかと期待している。

参考文献

- [1] A. Tonomura, et al., Am. J. Phys. **57**, 117(1989).
- [2] A. Tonomura, Rev. Mod. Phys. **59**, 639(1987); 外村彰, 電子波で見る世界 (丸善1985)
- [3] J. Endo, et al., Proc. ICO-13, 480(1984).
- [4] S. Hasegawa, et al., J. Appl. Phys. **65**, 2000(1989).
- [5] S. Hasegawa, et al., Phys. Rev. **B43**, 7631(1991).
- [6] M. Peshkin & A. Tonomura, *The Aharonov-Bohm Effect*, Springer, 1989.
- [7] A. Tonomura, et al. Phys. Rev. Lett. **56**, 792(1986).
- [8] S. Hasegawa, et al., Phys. Rev. **B47**, 9903(1993).
- [9] S. Hasegawa, et al., Jap. J. Appl. Phys. **24**, L387(1985); 井野正三他, 応用物理 **56**, 843(1987).
- [10] S. Hasegawa, et al., Surf. Sci. **186**, 138(1987).
- [11] J. C. H. Spence & Y. Kim, in *Reflection High-Energy Electron Diffraction and Reflection Electron Imaging of Surfaces*, (ed. P. K. Larsen & P. J. Dobson) p.117(1988).
- [12] T. Yamanaka, Thesis (Univ. Tokyo, 1993).
- [13] B. A. Joyce, et al., Surf. Sci. **168**, 423(1986).
- [14] K. Reginski, et al., Surf. Sci. **327**, 93(1995).
- [15] M. Jalochowski & E. Bauer, Phys. Rev. **38**, 5272(1988).
- [16] 長谷川幸雄, 固体物理 **29**, 698(1994).
- [17] M. F. Crommie, et al., Nature **363**, 524(1993).
- [18] M. F. Crommie, et al. Science **262**, 218(1993).
- [19] 青野正和, 中山知信, 表面科学 **16**, 34(1995).
- [20] R. A. Webb, et al., Phys. Rev. Lett. **54**, 2696(1985).
- [21] A. Yacoby, et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 3149(1994).
- [22] S. Hasegawa & S. Ino, Phys. rev. Lett. **68**, 1192(1992); Surf. Sci. **283**, 438(1993); Thin Solid Films **228**, 113(1993); Int. J. Mod. Phys. **B7**, 3817(1993).