

# ゲルマニウム単原子シート「ゲルマネン」の原子配置の非対称化

日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター 深谷 有喜  
極限コヒーレント光科学研究センター 松田 巖

最近、グラフェンのハニカム構造の骨格をそのままに、炭素原子を同じ周期表 IV 族のより重い元素で置き換えた新奇原子シートの創製が試みられている。このうち、シリコンとゲルマニウム原子で置き換えられた原子シートは、二重結合の接尾辞を意味する“ene”をつけて、それぞれ“silicene(シリセン)”と“germanene(ゲルマネン)”と呼ばれる。シリセン、ゲルマネンもまたグラフェンと同様に線形のエネルギー分散を持つディラックコーンを有し、極めて高いキャリア移動度を発現することが理論的に予想されている[1,2]。これに加え、重元素由来の強いスピン軌道相互作用と、 $sp^3$  混成軌道に伴うバックリング配置(座屈構造)の相乗効果により、二次元トポロジカル絶縁体や量子スピンホール効果等の新奇なスピン物性の発現も期待されている[3]。

グラフェンはグラファイト(黒鉛)から剥離したものであり、元来自然界に存在するものである。しかしシリセンやゲルマネンでは、グラフェンにおけるグラファイトのような母材が存在しないため、それらは人工的に合成するほかない。1994 年にはシリセン、ゲルマネンの先駆的理論研究[1]が報告されていたものの、試料合成の困難さからこれらは理論的な研究対象としてみなされていた。しかし、2012 年の Ag(111)表面[4,5]および ZrB<sub>2</sub>(0001)薄膜表面上[6]でのシリセンの合成の成功を契機に、自然界には存在しない人工的な原子シートの研究分野が一気に開花した。2014 年にはゲルマネンも合成され[7]、現在では様々な基板表面でのシリセン、ゲルマネンの報告が相次いでいる。

今回研究対象とした Al(111)表面上のゲルマネンは 2015 年に報告された[8]。80°C に保たれた Al(111)表面上に Ge 原子を 1 原子層分蒸着すると、広く均一なゲルマネンが自己組織化する。このゲルマネンは、理想的な Al(111)の単位格子に対して 3×3 の超周期構造をとる。当初、走査型トンネル顕微鏡(STM)と第一原理計算を用いた複合的な解析から、ゲルマネンの単位格子に含まれる 8 個の Ge 原子当たり 2 個が真空側に緩和したバックリング構造を形成すると考えられていた(図 1(a))。この構造モデルでは、 $\langle 110 \rangle$  に対して鏡面対称性をもつことが特徴である。しかし、ゲルマネンの物性を決定する重要な構造パラメータである

バックリングの大きさや基板との間隔などの詳細は不明なままであった。そこで我々は、表面敏感な構造解析手法である全反射高速陽電子回折(TRHEPD)法を用いて詳細な原子配置の決定を試みた[9]。

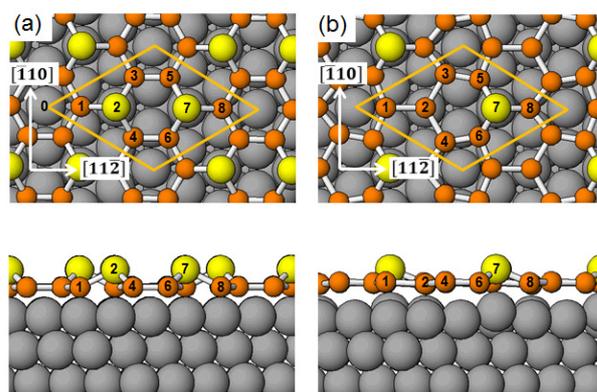


図 1 Al(111)基板表面上のゲルマネンの構造モデル ((a): これまでに予想されていたもの、(b): 今回の新たに提唱したもの)。オレンジと黄色の丸はいずれも Ge 原子を表しているが、真空側に突出したものを黄色で強調している。灰色の丸は Al 原子である。

本研究で用いた TRHEPD 法は反射高速電子回折(RHEED)の陽電子版である(図 2)[10]。陽電子は電子の反粒子であり、電子と同じ質量、電荷、スピンを持つが、電荷の符号は電子とは逆のプラスである。したがって、全ての物質の結晶ポテンシャルは陽電子に対して障壁として働くため、陽電子ビームの物質中への侵入深さは電子に比べて低く抑えられる。特に、低視射角入射の場合には全反射が起こり、その時の侵入深さは 1 Å 以下(原子 1 個分)になる。この表面感性が TRHEPD 法が原子シートの構造解析に有用たるゆえんである。

結果として、Al(111)表面上のゲルマネンの構造はそもそも対称的ではなく非対称なものであることがわかった。ロッキング曲線(視射角に対する回折スポット強度)の実験値を図 3 の白丸で示す。先に提案された対称的な構造モデルが正しいとすると、 $[11\bar{2}]$ と $[\bar{1}10]$ の両入射方位で測定した一对のロッキング曲線(例えば、図 3(b)における  $-1/3$   $1/3$  と  $1/3$   $-1/3$  スポット)は同じ形状になるべきであるが、実際の測定ではそうはならなかった。したがってゲルマネン

