

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 24 年 6 月 12 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20360016

研究課題名（和文）走査プローブ顕微鏡によるナノスケール局所電気特性計測に関する理論解析

研究課題名（英文）Theoretical analyses on nanoscale local electric property measurements using scanning tunneling microscopes

研究代表者 渡邊 聡（SATOSHI WATANABE）

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号：00292772

研究成果の概要（和文）：走査プローブ顕微鏡を用いた各種ナノスケール局所電気特性計測の理論解析に必要な方法論・シミュレータを開発・改良し、局所トンネル障壁高さ計測と印加電圧による探針誘起バンド湾曲との相関の解明、4 端子抵抗測定にゲート電圧による抵抗値振動や府抵抗値出現の原因の解明、4 端子抵抗測定におけるゼロ電流条件を満たす電圧プローブの電圧値を推測する公式の導出、等の成果を得た。

研究成果の概要（英文）：We have developed and improved methods and computational codes for theoretical analyses on nanoscale local electric property measurements using scanning probe microscopes. Using the codes, we have achieved, for example, clarification of relation between local tunneling barrier height measurements and band bending induces by a voltage applied to probe, clarification of origins of the oscillation with the gate voltage and appearance of negative values in four-probe resistance measurements, and derivation of formula to determine voltages in the voltage probes that satisfy the zero-current condition in the four-probe resistance measurements.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
20 年度	3,000,000	900,000	3,900,000
21 年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
22 年度	2,300,000	690,000	2,990,000
総計	8,800,000	2,640,000	11,440,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：走査プローブ顕微鏡、電気特性計算、ナノスケール電気伝導、ナノ構造

1. 研究開始当初の背景

半導体デバイス等の微細化に伴い、ナノスケール局所電気特性計測はますます重要になっており、特に走査プローブ顕微鏡を用いた各種の計測技術が進歩している。しかし、対象プローブ間相互作用や計測時の印加バイアス電圧等の影響により、これらのナノスケール局所電気特性計測の実験データの正しい解釈は必ずしも容易でない。一方、電子顕微鏡観察等では信頼性の高いシミュレ

ーションで解析を支援する事例が増えている。このような解析支援はナノスケール局所電気特性計測において一層有用と考えられるにもかかわらず、理論研究はごく限られた場合についてしかされていなかった。

そこで本研究代表者・分担者はナノスケール局所電気特性計測に対するシミュレータの開発を進めていた。そして、局所トンネル障壁高さ計測の走査像を世界で初めて計算する等の成果を挙げていた。しかし、対象と

する系や計測の種類の中で、実験計測技術の進歩やそれを用いた興味深い結果の報告に対しては全く不十分な状況であった。

2. 研究の目的

上記の背景を踏まえ、本研究では走査プローブ顕微鏡を応用した各種ナノスケール局所電気特性計測を理論解析するのに必要な方法論・シミュレータの改良を行い、理論解析により計測量の物理的意味を明確にすると共に、関連する計測手法間の計測量の相互の関係を明確にすることを目指した。具体的には、1) 局所トンネル障壁高さ計測とケルビン力顕微鏡、2) 多探針電気特性計測、3) キャパシタンス関連計測の3つのサブテーマを立て、研究開始以前に取り組んでいた単純金属表面や単原子鎖から半導体表面やカーボンナノチューブ等に対象を広げ、以下の点を目標に研究を進めた。

局所トンネル障壁高さ計測とケルビン力顕微鏡については、半導体表面等を対象に局所トンネル障壁高さ計測を解析して、金属表面との違い（例えばバンド湾曲が測定値に与える影響の有無）を明らかにすることと、ケルビン力顕微鏡について原子レベル解像度の測定値の物理的意味を明らかにすることを目標とした。

多探針電気特性計測については、シミュレーションのための計算プログラム開発から始めた。開発したプログラムを用いた解析により、プローブ-試料間接触の影響がプローブ間の電流-電圧特性にどのように現れるかを明らかにすることを目標とした。

キャパシタンス関連計測については、走査キャパシタンス顕微鏡と走査型非線形誘電率顕微鏡を念頭に、半導体や誘電体膜を含むナノ構造のキャパシタンスを理論的に評価する方法論を確立することを目標とした。

3. 研究の方法

(1) 局所トンネル障壁高さ計測とケルビン力顕微鏡については、研究開始以前に我々が開発していた境界マッチング密度汎関数法を用いる。この方法では、半無限ジェリウム電極間のナノ構造の電子状態と電気伝導特性とを、バイアス電圧印加下で密度汎関数法計算できる（なお、ジェリウムとは、イオン芯の正電荷を一様に均したモデルである）。プローブと試料をそれぞれ半無限電極に接続し、プローブ-試料間距離を変えて電流を計算することにより実験と同様の方法で局所トンネル障壁高さを評価できる。また、系内の各原子およびジェリウム電極に働く力を計測できることから、探針-試料間力が最小になるようなバイアス電圧を計測するケルビン力顕微鏡像のシミュレーションも可能である。しかし、この方法で計算を勧めた

ところ、トンネル電流が無視できない領域においてはプローブ-試料間に働く力に不釣り合いがみられ、その原因を解明するには至らなかったため、このサブテーマの研究は局所障壁高さに集中することとした。

(2) 多探針電気特性計測については、特に4端子抵抗を中心に解析した。このためには4個の半無限電極に接続した系における電流の計算が必要である。この計算に適した方法について研究開始前から検討を進めた結果、非平衡グリーン関数法を採用することとした。また、計算量の観点から、第一原理計算でなく、密度汎関数法によってパラメータ値を定めた、密度汎関数強束縛法を用いることとした。まず4端子抵抗計測についてバイアス電圧ゼロの極限での解析を行い、プローブ-試料間接触の影響、特に接触による試料の電子状態変化の伝導度への影響について考察した。次に、有限バイアス印加時について、「電圧プローブに流れる電流はゼロ」という4端子抵抗測定条件を満たす電圧と入力（電流）端子間電圧との関連等を理論解析すると共に、4電極に独立な電圧を印加可能な計算プログラムを開発し、これを用いた解析も行った。

(3) キャパシタンス関連計測については、研究開始当初に電極/絶縁体（ないし半導体）積層ナノ構造に対してキャパシタンスを信頼性高く評価できる方法論は無かった。そこで、バイアス電圧印加によるエネルギー変化とキャパシタンスとの関係、すなわち（バイアス電圧印加によって系に蓄えられるエネルギー） $=0.5 \times (\text{キャパシタンス}) \times (\text{バイアス電圧})^2$ の関係からキャパシタンスを算出することとした。非平衡グリーン関数法の枠内でこれを試みた結果、予期された振る舞いが得られず、その原因を特定するには至らなかった。しかし、その後、金属/絶縁体/金属積層構造の電場印加下での電子状態を計算できる「軌道分離法」を考案し、トンネル電流が無視できる状況という制約はあるものの、バイアス電圧と全エネルギーとの関係からキャパシタンスを計算する第一原理計算法を確立することができた。軌道分離法では、フェルミ準位近傍の電子状態が2つの金属層のどちらに帰属するものであるか判定し、2つの金属層に異なるフェルミ準位を指定することにより、両者の間に電場が印加された状態を実現する。この方法は、標準的な密度汎関数法計算プログラムに容易に実装することが可能である。なお、研究の進捗状況に鑑み、「走査キャパシタンス顕微鏡と走査型非線形誘電率顕微鏡」からキャパシタンスが重要な役割を演じる「ナノ構造の交流応答特性と過渡応答特性」に当初の目標を一

部変更し、これらの特性を非平衡グリーン関数法で計算して、キャパシタンスとの関連に注目しながら解析した。

4. 研究成果

(1) 水素終端されたシリコン (100) 表面を例に、前節 (1) に述べた方法でバイアス電圧印加下の電子状態とプローブ-試料間電流を計算し、それを基に局所トンネル障壁高さやトンネル電子のエネルギー分布や探針-試料間電流経路の実質的な太さに依存する物理量であることから理解できる。

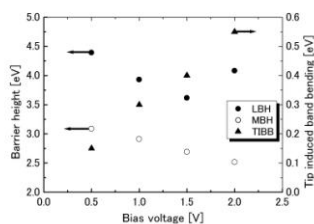


図1: LBH、MBH、および TIBB の電圧依存性

も調べた。図1にTIBB、LBHおよびMBHのバイアス電圧依存性を示す。TIBBは電圧の増加と共にほぼ線形に増加していることがわかる。これは、既報の測定結果 (Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 2471) と良く一致している。一方、LBHは電圧変化に対して非線形な振る舞いを示し、MBHは電圧の増加に伴い線形に減少することがわかる。このように、LBHのみ単調でない振る舞いを示しているが、これはLBHが障壁高さそのもの(すなわちMBH)でなく、トンネル電子のエネルギー分布や探針-試料間電流経路の実質的な太さに依存する物理量であることから理解できる。

(2) 4端子抵抗の解析から以下の結果を得た。

①炭素原子鎖からなる単純な4端子系について、開発したプログラムを用いてエネルギーに対する4端子抵抗スペクトルを計算した。4端子抵抗スペクトルは電子のエネルギーに対して振動し、この振動の様子はプローブ-試料間の相対的位置関係に依存した。さらに、極小点では負の値を生じる場合が見られた。解析の結果、これらの振舞いはプローブ-試料接点での反射による電子波干渉から理解できることがわかった。
②4端子抵抗スペクトルをより詳しく解析するために、4端子抵抗スペクトルに

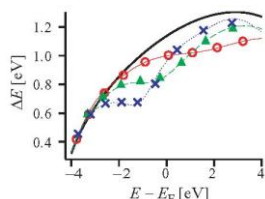


図2: ピーク間隔スペクトル。プローブ-試料間距離の異なる3つの場合の結果と電子波の多重反射のみから予測した物(黒実線)。

現れる振動のピーク間隔の入射エネルギー依存性である「ピーク間隔スペクトル」を導入した。図2にその一例を示す。(5,5)-カーボンナノチューブからなる4端子系についてこのピーク間隔スペクトルを調べたところ、異なるプローブ間隔で共通の位置にピーク間隔スペクトルに落ち込みが現れた。接点における射影状態密度との比較より、この落ち込みはプローブ-試料の接触位置における共鳴状態と関連していることが明らかになった。

③電子-フォノン非弾性散乱の影響を自己無撞着ボルン近似で考慮する計算プログラム拡張を行い、拡張したプログラムを用いて水素原子鎖からなる4端子系における4端子抵抗を計算した。簡単のため、原子振動(フォノン)は中央の一原子のみに対して考慮した。2端子および4端子微分抵抗の印加電圧依存性を計算した結果、いずれにおいても振動エネルギーに対応する印加電圧42mV以上に印加電圧76mVにおいて非弾性散乱を考慮しない場合より値が上昇した。解析の結果、これは電流プローブと一方の電圧プローブとの間の電位差に対応することがわかった。

④有限バイアスの影響を考慮した多端子伝導特性の解析に関しては、まずランダウア・ビュティカーの公式とゼロバイアス極限での透過関数スペクトルから有限バイアスでの4端子抵抗を見積る評価式を導出した。この評価式を用いて電圧プローブの電流がゼロとなるような電圧プローブの電気化学ポテンシャルを決定すると、この値は電流プローブ間の印加電圧に対し、非線形な振る舞いを示すことがわかった。さらに、有限バイアス電圧下で電子状態を自己無撞着計算するよう改良した計算プログラムと、上記の評価式によって決定した電圧プローブの化学ポテンシャル値を用いて数値計算を行った結果、電圧プローブの電流は電流端子間の電流よりずっと小さく、上記評価式がよい近似であることが分かった。一方、小さいとはいえ有限の電流が電圧プローブに流れており、この電流がバイアス電圧印加による透過関数スペクトルの変化に起因することを明らかにした。

(3) キャパシタンス関連現象については、以下の結果を得た。

①軌道分離法を用いてAu/MgO/Auヘテロ構造について電圧印加下の電子状態計算を行った

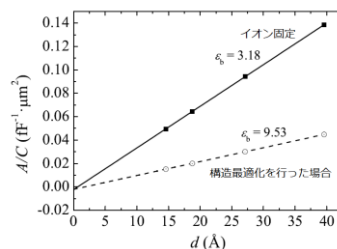


図3: Au/MgO/Au系のキャパシタンスのMgO膜厚依存性

ところ、全エネルギーと印加電圧との間には期待通り放物線でよくフィッティングできる関係があった。これを用いてキャパシタンスを評価し、その逆数のMgO膜厚依存性を調べた。イオンを固定した場合と、バイアス下で構造最適化を行った場合の結果を図3に示す。各直線の傾きは、バルクMgOの光学誘電率、静的誘電率の計算値にそれぞれ対応しており、これは本方法により精度良くキャパシタンスが評価できていることを示す。

②交流応答特性については、金属的な単層カーボンナノチューブ(SWNT)に対して解析した結果、有限長の金属SWNTのアドミッタンスの振舞いが、フェルミ波数0の場合と $2\pi/3a$ (a はユニットセル長)の場合で大きく異なることを見出した。得られたアドミッタンスを古典的な等価回路を用いてフィッティングすると、インダクタンスとキャパシタンスについても同様に振舞いの異なる2種類に分類できることがわかった。一方、過渡電流特性については、量子ドット(QD)に矩形波ゲート電圧を印加した場合を解析した結果、緩和時間や最大瞬時電流値のQD-電極接触強度依存性について、最近の実験結果(Science 316 (2007) 1169)をよく説明しうる結果を得た。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計9件)

- ① 寺澤麻子、飛松啓司、多田朋史、山本貴博、渡邊聡、「ナノスケールの4端子抵抗測定における量子干渉効果の理論研究」表面科学、31 (8) 374-379 (2010)
DOI:10.1380/jssj.31.374
- ② Kenji Sasaoka, Takahiro Yamamoto and Satoshi Watanabe, "Single-electron pumping from a quantum dot into an electrode," Applied Physics Letters, 96 102105 1-3, (2010) DOI: 10.1063/1.3319497
- ③ Asako Terasawa, Tomofumi Tada and Satoshi Watanabe, "Theoretical study of fore-probe resistance in nanoscale measurements: Monatomic carbon chains and (5,5)-carbon nanotubes," Physical Review B, 79 195436 1-5 (2009)
DOI: 10.1103/PhysRevB.79.195436

[学会発表] (計36件)

- ① Satoshi Watanabe, Wei Liu, Daisuke Hirai, Kenji Sasaoka and Takahiro Yamamoto, "Simulations on time-varying nanoscale electronic transport," Asian Consortium for Computational Materials Science the third Working Group Meeting

(ACCMS-WGM3) on Advances in Nano-device Simulation, March 31 - April 2, 2011 (Jeju Island, Korea)

- ② Asako Terasawa, Keiji Tobimatsu, Tomofumi Tada, Takahiro Yamamoto and Satoshi Watanabe, "Simulation of nanoscale four-probe resistance measurements under finite bias voltages," APS March meeting 2011, March 21-25, 2011 (Dallas, U.S.A)
- ③ 渡邊聡、「Recent topics in theoretical studies on measurements using SPM」、日本物理学会第65回年次大会、2010年3月20日、岡山大学(岡山県岡山市)
- ④ Hideomi Totsuka and Satoshi Watanabe, "Theoretical analysis on the effect of tip-induced band bending on scanning tunneling spectroscopy measurements on H-terminated Si(100) surface," 2009 American Physical Society March Meeting, March 18, 2009 (Pittsburgh, U.S.A)

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

- (1)研究代表者
渡邊 聡 (WATANABE SATOSHI)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：00292772
- (2)研究分担者
多田朋史 (TADA TOMOFUMI)
東京大学・大学院工学系研究科・特任准教授
研究者番号：40376512
- (3)連携研究者
戸塚英臣 (TOTSUKA HIDEOMI)
日本大学・理工学部・助手
研究者番号：10339260