

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 15 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22510129

研究課題名（和文）

磁性金属ナノワイヤ伝導の構造依存性に関する解明

研究課題名（英文）

A study of the structure dependence of conductance in magnetic metal contacts

研究代表者

大島 義文 (OSHIMA YOSHIFUMI)

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・特任准教授

研究者番号：80272699

研究成果の概要（和文）：

超高真空透過型電子顕微鏡に組み込める液体窒素冷却が可能な走査型トンネル顕微鏡（STM）ホルダーの開発を開発した。このホルダーを用いて、収束イオンビーム照射によるミリングで、ナノメートルレベルのギャップを作製し、マイクロ蒸着源によりギャップ近傍に高純度の磁性金属を蒸着し、透過型電子顕微鏡を用いながら液体窒素冷却下において、その構造を直接観察しながら伝導特性のその場計測を行った。

研究成果の概要（英文）：

I developed the scanning tunneling microscope (STM) holder which can be installed in an ultrahigh vacuum transmission electron microscope (TEM) under liquid nitrogen cooling temperature. Using this holder, I fabricated the gap of the nanometer level by milling by the convergence ion beam irradiation and deposited highly-pure magnetic metal around the gap by a micro deposition source and performed the electric conductance measurement of during observing the structure under liquid nitrogen cooling in TEM.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
2012 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：物性物理

科研費の分科・細目：ナノマイクロ科学・ナノ構造物理

キーワード：ナノワイヤ、透過型電子顕微鏡、走査型トンネル顕微鏡、磁性金属

## 1. 研究開始当初の背景

金単原子鎖がコンダクタンス量子数、 $1G_0$  ( $=2e^2/h$ ) をとることが明らかになって以来、金属ナノワイヤの量子化伝導について精力的に行われている。主に、金属接点を引き延

ばす過程における多数回のコンダクタンス計測から、優先的に現れる値が議論されている。金、銀などの貴金属接点は、統計的には、コンダクタンス量子数の整数倍が現れやすいことが示されたが、引き延ばす毎のコンダ

クタンス値は、必ずしも同じような傾向を示さないし、量子化コンダクタンスの整数倍をとらないこともある。このような実験事実に対し、金属ナノワイヤの電子的な安定状態や構造的な安定状態などが理論的に調べられているが、はっきりとした結論が得られていない。

我々のグループは、この問題に対し、超高真空透過型電子顕微鏡に組み込むことができる走査型トンネル顕微鏡ホルダーを開発し、電極や金属ナノワイヤの構造とコンダクタンスの関係を調べ、金ナノワイヤにおいて、形状や機械的性質とコンダクタンスに密接な関係があることを結論した。簡単に言えば、コンダクタンスが量子化するのは、ある特定の軸方位に伸びたナノワイヤである。逆に言えば、金属ナノワイヤすべてが量子化されない。左図が、我々の結果を簡潔にまとめた結果である。上から順に、ワイヤ軸（引張っている方向と考えてよい）が[111]、[100]、[110]の金ナノワイヤの TEM 像、モデル、引張り過程のコンダクタンス変化を示している。

## 2. 研究の目的

金[111]、[100]コンタクトがボトルネック形状であるのに対し、金[110]ナノワイヤは、六角柱状のナノワイヤ形状である。いずれの場合も、引張り過程におけるコンダクタンス変化は、弾性領域でほとんど変化しないが、塑性変形する瞬間に階段状に下がる。しかし、弾性領域の長さ、すなわち、コンダクタンス・プラトーの長さは、金[111]、[100]コンタクトに比べ金[110]ナノワイヤが1桁くらい小さい。金[111]、[100]コンタクトの場合、得られるコンダクタンス値は、引張り過程毎にほぼ同じであるが、コンダクタンス量子数の整数倍をとらない。一方、金[110]ナノワイヤの場合、得られるコンダクタンス値は、引張り過程毎に異なるものの、ほぼコンダクタンス量子数の整数倍をとる。以上の結果は、両者には、機械的性質の違いや、コンダクタンスの量子化にかかわる違いがあることを示している。実際に、金[110]ナノワイヤについて、実験結果より断面構造とコンダクタンス値を決定し、計算から得られるコンダクタンスチャンネル数と比較することで、金[110]ナノワイヤの量子化コンダクタンスを確認した。

磁性元素（材料）ナノワイヤ・コンタクトのコンダクタンス計測は、精力的に行われている。しかし、再現性があまりないこともあり、理解が進んでいない。磁性原子ナノワイヤ・コンタクトのコンダクタンスは、p, d 電子が伝導に関与していると考えられ、形状や機械的性質（さらには原子配置など）に敏感で

あると予想される。すなわち、磁性原子ナノワイヤ・コンタクトの伝導現象を明らかにする上で、構造とコンダクタンスの関係を直接調べることは極めて重要なテーマである。

本課題では、現在開発している「超高真空透過型電子顕微鏡に組み込むことができる走査型トンネル顕微鏡ホルダー」を用いて、磁性金属ナノワイヤの形状や機械的性質によってコンダクタンスの振る舞いにどのような相違が観測されるのかを明らかにすることを目的とする。装置は、ほぼ現在有している装置を使用する。ただし、磁性材料は、透過型電子顕微鏡のポールピースの電磁石（試料に対し、垂直方向に2テスラ程度印加される）の影響があるため、原子レベルの顕微鏡像を得ることはできない。そこで、試料作製を工夫し、磁性金属ナノワイヤを可視化すること、そして、コンダクタンス計測は、ポールピースの電磁石をオフにすることによってその場で行うとともに、超高真空チャンバーによっても、磁場の影響がない場所でも行う。

## 3. 研究の方法

「超高真空透過型電子顕微鏡 (UHV-TEM) に組み込むことができる走査型トンネル顕微鏡 (STM) ホルダー」を用いて、磁性ナノワイヤの TEM 観察が可能になるような工夫を行う。具体的には、あらかじめ STM ホルダーの電極間に非磁性金属ワイヤ（タングステンなど）を架橋させ、イオンスパッタによりワイヤ中央部を細くし、最終的に切断する。その切断した先端に磁性金属を微量に蒸着させる。磁性ナノワイヤは、両端に蒸着した磁性金属膜を押し付けたり、引っ張ったりすることにより作製する。

この方法を実現するため、本科研費を用いて、既設の真空チャンバーに、新たなマイクロ蒸着源を設計・作製し、取り付ける。また、真空チャンバーの真空度を上げる必要があるため、本科研費を用いて、ターボ分子ポンプ・ロータリーポンプを購入し、取り付ける。図は、マイクロ蒸着源の模式図である。上の図は、STM ホルダーを上から見た模式図であり、下の図は、横から見た時の模式図である。マイクロ蒸着源は、この STM ホルダーの下側に取り付けられており、2つの電極間（間隔 2 mm）に架橋された金属ワイヤの中心部、およそ  $\phi 0.5\text{--}1\text{mm}$ 、にだけ金属が蒸着されるように、首の長いガイドを設置する。金属は、るつぽに置き、通電加熱により蒸発させる。

UHV-TEM において、磁性ナノワイヤの作製、および、構造を調べる。

ワイヤ軸によって、ナノワイヤの形状が異なることが予想される。主な結晶方位をワイヤ軸とする磁性金属ナノワイヤを作製し、その構造的特徴を調べる。磁性金属として、鉄、ニッケル、コバルトなどについて検討する。

次に、ワイヤ軸によって異なる形状をとるナノワイヤを引張る過程における構造とコンダクタンス変化について計測を行う。ただし、対物ポールピースの強い磁場の影響を除くため、コンダクタンス計測は、対物ポールピースの磁場をオフにした状態で計測する必要がある。したがって、引張る過程における構造とコンダクタンス変化を同時に計測できない場合、引張る速度を一定とし、時間による構造変化から構造に関する特徴をとらえ、一方、時間によるコンダクタンス変化からコンダクタンスに関する特徴を捉え、伝導現象について明らかにする。

#### 4. 研究成果

開発した走査型トンネル顕微鏡 (STM) ホルダーの性能を調べるため、金接点の観察を行った。図 1 は、得られた典型的な金接点の TEM 像 2 例である。(a) は、ワイヤ軸が  $[110]$  方位であり、六角柱形状をしている。(b) は、ワイヤ軸が  $[11\bar{1}]$  方位であり、ボトルネック形状をしている。これらの金ナノワイヤについて、最もくびれた断面の断面積と計測したコンダクタンスの関係性を調べた結果が図 1(c) である。この関係は線形であること、そして、図中に黒線で示したシャーピンの式でよく説明できることから、1-2nm サイズの金接点が多チャンネルな電気伝導を示すことが明らかとなった。

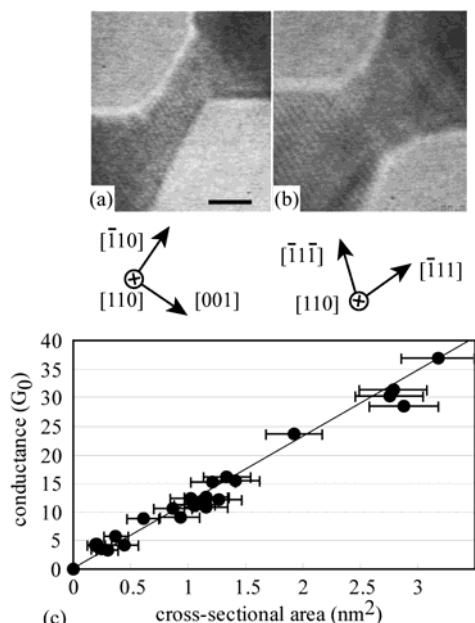


図 1

そこで、この金接点に印加するバイアスを増加させることで、どのくらいの電圧で破断するかを計測した。図 2 は、バイアス電圧の増加に伴う、金接点の電流変化を示す。金接点のくびれは、連続的なバイアス変化に対し、不連続に細くなり (楕円で示すようなところで細くなる)、最終的に破断した。この図において、傾きに対応する電流密度に注目すると、電流密度が徐々に大きくなり、ある値に達すると破断していることがわかる。図 2 に、この金接点の連続的な変化を示す TEM 像を示す。電子は、白い矢印で示す方向に動いている。右側の正極と左側の負極の形状に注目すると、細くなるにつれて、左側の負極が明らか細くなっていることがわかる。破断プロセスにおいて、金原子のエレクトロミグレーションが重要な役割を果たしていることがわかる。

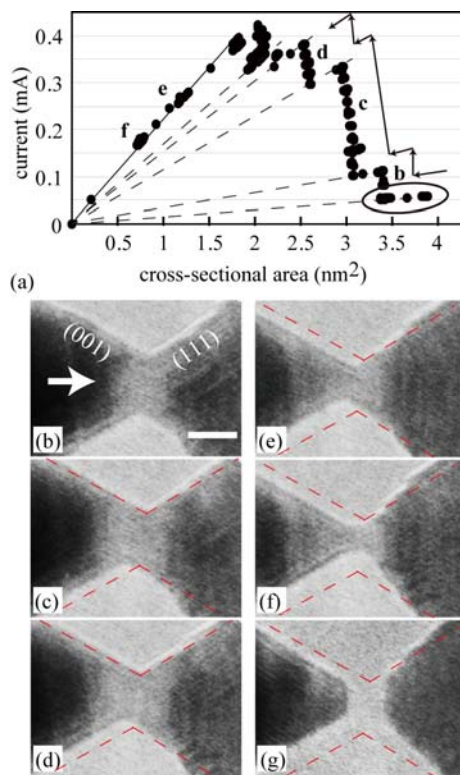


図 2

図 3 は、金接点の破断するバイアス電圧を調べた結果である。破断電圧は、およそ 0.25V 程度であることがわかった。破断電圧にばらつきがあるのは、金接点付近に残留している歪みの違いによるものと思われる (破断後の両電極間のずれなどから推測できる)。これまでの研究で、温度 4K において、金原子接点の破断電圧は 1V であると報告されている。この破断がエレクトロミグレーションによって引き起こされていることを考えると、おそらく温度に依存した拡散量の違いによるものと思われる。

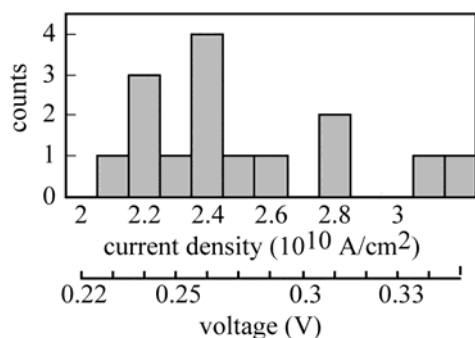


図3

開発した走査型トンネル顕微鏡 (STM) ホルダーを用いて、金接点の物性計測をおこなうことができた。そこで、この金接点を破断した後、両電極表面に磁性金属を蒸着することで、磁性金属接点を調べることを行っている。今後、磁性金属接点に関する新たな知見が得られるものと考えている。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 21 件)

1. Y. Oshima and Y. Kurui, Phys. Rev. B 87(R) (2013) 081404 (5 pages).
2. S. Lee, Y. Oshima, E. Hosono, H. Zhou and K. Takayanagi, Ultramicroscopy 125 (2013) 43-48.
3. S. Lee, Y. Oshima, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, T. Kaneyama, Y. Kondo, Y. Tanishiro and K. Takayanagi, e-J. Surf. Sci. and Nanotech. 10 (2012) 454-458.
4. S. Kim, Y. Oshima, Y. Tanishiro, K. Takayanagi, Ultramicroscopy 121 (2012) 38-41.
5. Y. Oshima, J. Electron Microscopy 61 (2012) 133-144.
6. S. Kim, Y. Oshima, N. Nakajima, N. Hashikawa, K. Asayama and K. Takayanagi, Thin Solid Films 520, 2562-2565 (2012).
7. S. Lee, Y. Oshima, S. Niitaka, H. Takagi, Y. Tanishiro, and K. Takayanagi, Jpn. J. Appl. Phys. 51, 020202 (2012).
8. 大島義文, 李少淵, 高柳邦夫, 顕微鏡 47, 144-148 (2012).
9. 大島義文, 谷城康眞, 田中崇之, 高柳邦夫, 日本結晶学会誌 vol. 54 (3), 159-165 (2012).
10. 大島義文, 李少淵, 高柳邦夫, J. Vacuum Soc. Jpn Vol.55, 144-151 (2012).
11. K. Takayanagi, S. Kim, S. Lee, Y. Oshima, T. Tanaka, Y. Tanishiro, H. Sawada, F. Hosokawa, T. Tomita, T. Kaneyama, Y. Kondo J. Electron Microscopy 60, S239 (2011).

12. Y. Oshima, Y. Kurui, H. D. Nguyen, T. Ono and K. Takayanagi, Phys. Rev. B 84, 035401 (2011).
13. S. Lee, Y. Oshima, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, T. Kaneyama, Y. Kondo, S. Niitaka, H. Takagi, Y. Tanishiro, K. Takayanagi, J. Applied Physics 109, 113530 (2011).
14. Y. Oshima, Y. Kurui and K. Takayanagi, Applied Physics Express 4, 055002 (2011).
15. S. Kim, Y. Oshima, H. Sawada, T. Kaneyama, Y. Kondo, M. Takeguchi, Y. Nakayama, Y. Tanishiro, and K. Takayanagi, J. Electron Microscopy 60, 109-116 (2011).
16. 大島義文, 顕微鏡 Vol. 46, Suppl. 2, 21-24 (2011).
17. 大島義文, 真空 Vol. 54, No. 4, 241-247 (2011).
18. S. Kim, Y. Oshima, H. Sawada, N. Hashikawa, K. Asayama, T. Kaneyama, Y. Kondo, Y. T. and K. Takayanagi, Appl. Phys. Express 3, 081301 (3 pages) (2010).
19. Y. Oshima, Y. Kurui and K. Takayanagi, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 054702 (2010).
20. 大島義文, 久留井慶彦, 日本物理学会誌 Vol. 65, No. 9, 712-716 (2010) 最近の研究
21. 大島義文, 金秀鉉, 顕微鏡 Vol. 45, No. 4, 268 (2010).

[学会発表] (計 15 件)

1. Y. Oshima, S. Lee, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, T. Kaneyama, Y. Kondo, S. Niitaka, H. Takagi, Y. Tanishiro and K. Takayanagi, Microsc. Microanal. 17(S2) (2011) 1580.
2. Y. Oshima, S. Kim, Y. Tanishiro, and K. Takayanagi, Microsc. Microanal. 17(S2) (2011) 1294.
3. Y. Oshima, Y. Kurui, H. D. Nguyen, T. Ono and K. Takayanagi, Microsc. Microanal. 17(S2) (2011) 488.
4. T. Tanaka, A. Takeshita, T. Kubota, Y. Oshima, Y. Tanishiro, K. Takayanagi, Microsc. Microanal. 17(S2) (2011) 1268.
5. S. Lee, Y. Oshima, H. Sawada, F. Hosokawa, E. Okunishi, T. Kaneyama, Y. Kondo, Y. Tanishiro and K. Takayanagi, Atomic Level Characterization(ALC) '11 (Seoul) 26JS05 2011/5/26.
6. Y. Oshima, Y. Kurui, N.H. Duy, T. Ono and K. Takayanagi, Atomic Level Characterization(ALC) '11 (Seoul) 26JS05 2011/5/26.
7. S. Kim, Y. Oshima, H. Sawada, T. Kaneyama, Y. Kondo, M. Takeguchi, Y. Nakayama, Y. Tanishiro and K. Takayanagi,

- Atomic Level Characterization(ALC) '11  
(Seoul) 23JS05 2011/5/23.
8. S. Kim, Y. Oshima, Y. Tanishiro and K. Takayanagi,, APS March Meeting 2011 (Dallas), Abstract: W21.00005, 2011/3/24.
  9. Y. Oshima, T. Ono, K. Takayanagi and N. Duy Huy,, APS March Meeting 2011 (Dallas), Abstract: L10.00011, 2011/3/22.
  10. A. Takeshita, T. Tanaka, T. Kubota, H. Miyake, H. Sawada, Y. Kondo, Y. Oshima, Y. Tanishiro and K. Takayanagi,, APS March Meeting 2011 (Dallas), Abstract: C1.00136, 2011/3/21.
  11. Y. Oshima, H. Sawada, Y. Kondo, K. Takayanagi, Y. Tanishiro, 17th International Microscopy Congress (Rio de Janeiro), 2010/9/20.
  12. S. Lee, Y. Oshima, 17th International Microscopy Congress (Rio de Janeiro), 2010/9/20.
  13. Y. Oshima, Y. Kurui and K. Takayanagi, 17th International Microscopy Congress (Rio de Janeiro), 2010/9/23.
  14. Y. Oshima, Y. Kurui and K. Takayanagi, Microscopy & Microanalysis 2010 Meeting (Portland), 2010/8/5.
  15. Y. Oshima, H. Sawada, E. Okunishi, Y. Kondo, S. Niitaka, H. Takagi, Y. Tanishiro and K. Takayanagi, Microscopy & Microanalysis 2010 Meeting (Portland), 2010/8/4.

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

大島 義文 (OSHIMA YOSHIFUMI)

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・特  
任准教授

研究者番号：80272699