

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 30 日現在

機関番号：14301
研究種目：若手研究（B）
研究期間：2011～2012
課題番号：23760032
研究課題名（和文） 対向型 2 探針走査トンネル顕微鏡によるナノスケール電子伝導測定
研究課題名（英文） Conductance measurement at nanoscale using face to face dual tip Scanning Tunneling Microscopy
研究代表者 黒川 修（KUROKAWA SHU） 京都大学・大学院工学研究科・准教授 研究者番号：90303859

## 研究成果の概要（和文）：

走査トンネル顕微鏡は原子分解能をもった表面顕微鏡であり、複数の探針を使用することで、電子伝導特性の計測を行うことができる。しかしながら探針形状、試料形状による幾何学的な制約から、ナノスケールでの電子伝導特性を測定することはできない。本研究では試料形状を工夫することで、ナノスケールの接合の電子伝導特性を測定することが可能であることを実証した。

## 研究成果の概要（英文）：

Using very sharp tip of Scanning Tunneling Microscopy, one can measure the electric conductance of small objects. However, in conventional set up, we can't measure the conductance of nanoscale-objects, because of "geometric restriction". In this investigation, we have demonstrated that such measurement is possible by using very flat or very thin samples.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,600,000	1,080,000	4,680,000

## 研究分野：

表面科学

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

## 1. 研究開始当初の背景

我々はこれまで、MCBJ(Mechanically Controllable Break Junction)と呼ばれる手法を用いて、分子の電子伝導測定を行ってきた。この方法は、二つの探針状の電極の間に被測定物（この場合は分子）を挟み込み、その電子伝導特性を測定する手法である。この方法は非常に簡便であり優れた方法であるが、分子がどのように電極に吸着しているかといった情報は実験的には全く得られず、またその制御も不可能である。

このような問題を解決するためには、走査ト

ンネル顕微鏡 (STM) の探針を測定用のプローブとして使用する方法が考えられ、実際にいくつも研究結果の報告がある。この種の研究においては通常 1 本の STM の探針を複数備えた装置を使用することが多い。

しかしながら、通常のセットアップでは探針形状（先端が数 10nm）の影響で、真のナノスケールでの電子伝導特性の測定を行うことは困難である。すなわち、上記の探針形状の制約から STM を用いた電子伝導度特性の測定はこれまで数十 nm 以上の距離の測定に限られているが、この距離は多くの場合電子

の散乱長以上の距離になるため、いわゆるパ  
リステイック領域での電子伝導特性は比較  
的困難な課題である。

## 2. 研究の目的

上記の困難さは、理由が単純であるだけに非  
常に解決が難しい問題であるが、いくつかの  
工夫・ある種の妥協をすれば回避可能である。  
例えば、(1)直接電子伝導度測定を行う代わり  
に、局所的な電圧降下を測定する方法や、(2)  
試料を特殊な形状とする方法などが、考えら  
れる。本研究ではこれらを用いて真の  
ナノスケールでの電子伝導特性を測定する  
ことを目的とした。(1)の方法は最終的な対向  
型2探針走査トンネル顕微鏡開発の前段階  
ともいえるものであるが、構成が標準的な  
STM装置とほぼ同じであるため、簡便に研究  
が行える利点があり、まず、この方法で研究  
を行った。

## 3. 研究の方法

(1)の方法として、半導体薄膜を“探針”の  
替わりとして使用し、上面から通常のSTM(1  
探針)で電圧降下測定を行う手法と(2)の方  
法として、2探針のSTMに free standing の  
graphene を使用する方法の2つの研究を行  
った。(1)の方法では通常の超高真空STMを  
使用。(2)の方法では新たに装置を製作した。

### 方法(1)

この方法においては、分子を架橋できる程度  
のギャップ間隔をもった対向した電極構造  
が必要になる。かつ、その構造の表面は非常  
に平坦である必要がある。

我々はこれまでの研究により、SOI 基板を用  
いた構造に Ge 薄膜の蒸着を行うと、その構  
造・条件をうまく調整することで、上記のよ  
うな構造をある程度の確率で作製できる事  
実を見出しており、ここではその手法を用い  
て研究を行った。図1はこの手法を用いて作  
製した Ge によるギャップ構造のSTM像(上)  
と表面電位像(下)である。STM像では表面  
の凹凸が数 nm 程度であることが見て取れる。  
この程度の凹凸になると、STM 探針は基本  
的に表面全体を走査することができるよう  
になると考えられる。また下図の電位像では  
数 nm の領域で電位が変化していることを見  
取ることができ、これらを対向した電極とみ  
なすことができることがわかる。

### 方法(2)

図2に示したように、仮に対象となる試料の  
厚みが十分に薄ければ、図のように探針を2  
つ接近させ電子伝導特性の測定が行えると  
考えられる。

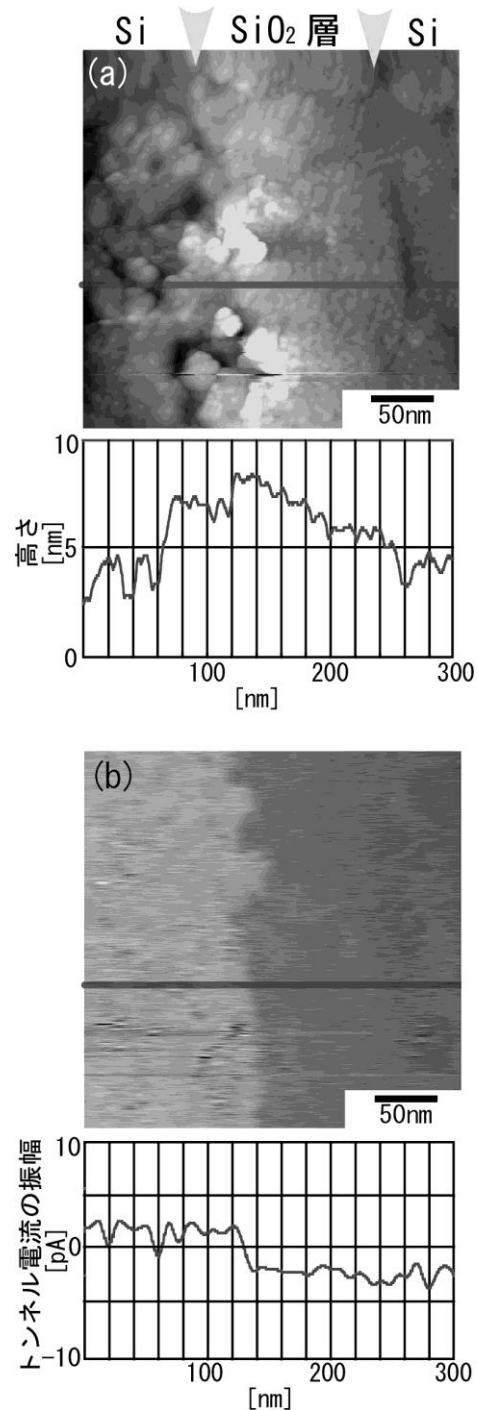
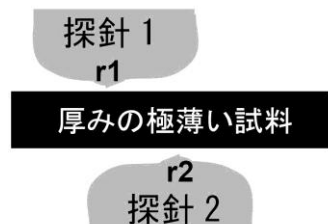


図1. 我々の見出した手法を用いた表面形状が平坦な電極構造での観察結果. 上がSTM像下が対応する領域での電位変化の様子を画像化した結果である. 電極間には交流電圧が印加されており、これに伴うトンネル電流の変調を測定することで、電位像を得た。

この場合、対象となる試料は限られる。代表的なものでは炭素一層からなるグラフェンを想定することができるが、他にもTEM(透過型電子顕微鏡)の試料作製技術を応用することで、いくつかの試料の測定を行うことが可能になると考えられる。

試料厚みが薄い場合に考えられる set up



試料として  
グラフェン、カーボンナノチューブ  
TEM 観察用試料 (金属, 半導体 .etc)  
が使用できる.

図 2 : 方法(2)のコンセプト図

#### 4. 研究成果

##### (1)の研究成果

図 3 は上記の方法で作製した Ge からなる電極構造の上に、C60 フラーレンを架橋させたものの STM 像 (左上) である。中央○で囲った箇所に C60 が架橋している。STM 像からは C60 と Ge 薄膜上の微細な構造との区別はつきにくい、STS (局所電子状態測定) を行うと両者を区別することができることが明らかになった。図 3 の結果から明なように C60 吸着サイトにおいては、-3V 付近に DOS (局所状態密度) のピークが現れている。(▼で示されている)。この電子状態は C60 の分子軌道由来のものであると予想されるが現在のところ、その詳細は明ではない、しかしながら、常にこの領域に観察されることから、この DOS のピークを電位の目安として使用することにした。図 1 の場合とは異なり、この実験では電極間に直流電圧を加え、電極間のギャップ近傍で先ほどの DOS ピークの電位を検出することで、近傍の電位変化を調べた。図 3 に示した結果から明かなように、この手法を用いることで、C60 由来のピークは場所によって変化し、すなわち、局所的な電位変化を調べることが可能であることが明らかになった。しかしながら、いくつかの問題も明らかになった。それは、この方法ではトンネル抵抗を通して表面の電位計測を行っており、トンネル抵抗の不安定さから、測定電位にばらつきがあること、また電極形状の凹凸の大きさにばらつきが多く、その場合形状の効果で STM 探針が得られた像から予想される位置でない箇所で表面にコンタクトしている場合が見受けられた点である。またこの方法では原理的に構造の電気抵抗の値を得ることが不可能である (電位変化、抵抗変化のみわかる。)

このようなことから方法(2)を用いて研究を行うこととした。

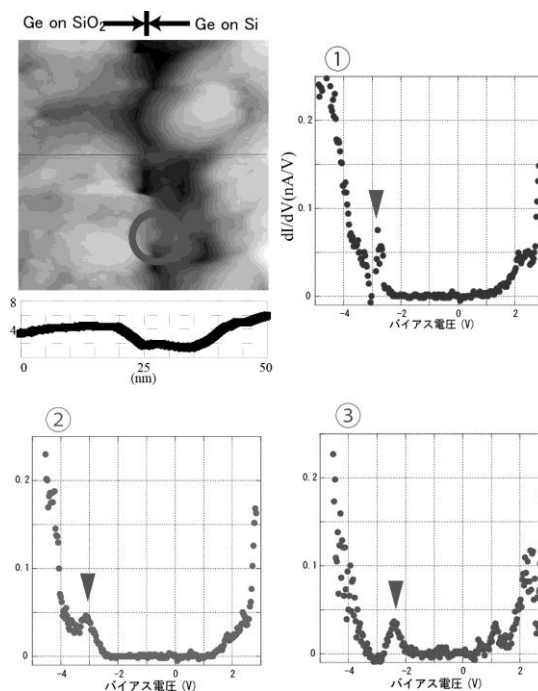


図 3 : 左上ギャップに架橋された C60 の STM 像。  
①ギャップの左側の領域での STS の結果、C60 近傍での STS の結果、③ギャップの右側での STS の結果

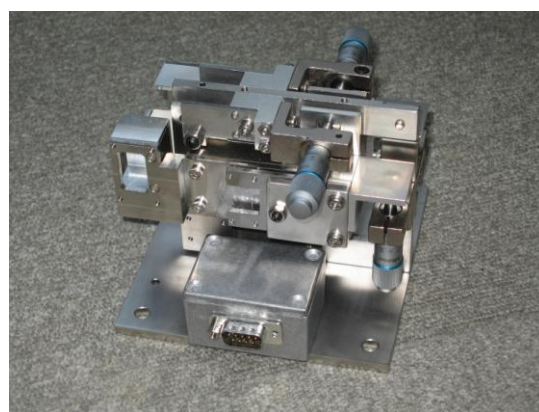


図 4: 作製した face to face 型 STM 装置の中心部分

##### (2)の研究成果

試料自身が非常に薄い場合は、その両側から探針を接近させることで、幾何学的な問題を回避することができる (図 2)。このことを目指して対向型 (face to face) の STM の開発を行った。世界的にも前例のない構造であったため、該当する市販の装置が、本体・制御装置とも存在せず、すべて自作することになった。特に、制御装置は市販のものを 2 つ購入して使用する案を始め検討していたが、検討の結果、二つの針を連動して操作する必要性があり、自作することにした。制御装置

は national Instruments 社製の LabVIEW を使用して構成した。本体は大気/雰囲気中での動作とし、光学顕微鏡下での誘導で針を接近させる方法を採用した。より近距離では探針間の静電容量測定によって探針間位置を調整する手法を開発した。設計当たっては探針の振動の原因となるいわゆる“メカニカルループ”を可能な限り低減する装置構造とした。全く一からの開発作製のため、時間がかかったが、現在装置が完成し、STM としての動作が確認できる状態となった。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- (1) Y. Kazumasa, S. Kurokawa, A. Sakai, "Admittance of Au/1,4-benzenedithiol/Ausingle-molecule junctions" APPLIED PHYSICS LETTERS 巻: 101 号: 25 記事番号: 253510 査読有

[学会発表] (計 2 件)

- (1) 黒川 修, 太田 靖, 酒井 明, 「Ge 蒸着によって Si-SiO<sub>2</sub> 境界に形成されるナノギャップの STM 観察 II」第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 12 日 松山 (12p-PA5-2)
- (2) Y. Ota, S. Kurokawa, and A. Sakai: "Formation of the nanogap applicable for direct observation of single molecule junction" December 13, 2011, Tokyo(13-PN80)

[その他]

ホームページ等

<http://www.mtl.kyoto-u.ac.jp/groups/electronicshp/src/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

黒川 修 (KUROKAWA SHU)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 90303859

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし