

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 27 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390028

研究課題名(和文) 金属単原子接点の交流安定性

研究課題名(英文) AC stability of metal single-atom contacts

研究代表者

酒井 明 (Sakai, Akira)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：80143543

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：交流バイアス下では接点の電流誘起破断の駆動力が時間平均されて弱まり、安定性が向上する。この交流効果を、Au単原子接点を対象として検証した。最初に交流破断電圧を100 kHzまでの周波数域で測定したが、破断電圧は直流の場合よりも低く、交流効果は観測されなかった。これはバイアスの増加とともに電極原子のホッピング頻度が増加し、交流による時間平均効果が効かなくなるためである。そこでバイアス振幅を低く抑え、1 MHzの交流バイアス下でAu単原子接点の寿命を測定する実験を行った。しかし低バイアスでは電圧/電流の影響は小さいためか、接点寿命分布は直流の場合と異ならず、交流の効果は認められなかった。

研究成果の概要(英文)：Metal contacts generally show better high-bias stability under AC biases because of the time-averaging of the electromigration force under alternating currents. To observe this AC effect for single-atom contacts of metals, we carried out break-voltage and lifetime measurements on Au single-atom contacts under AC biases. For frequencies up to 100 kHz, the AC break voltage does not surpass the one at DC. The absence of the AC effect can be understood by considering the hopping of electrode atoms, the frequency of which increases with the bias and makes the time averaging of the electromigration force ineffective near the breakdown. Thus, we employed a low bias and measured the contact lifetime at 1 MHz. However, the lifetime distributions obtained at DC and 1 MHz appear the same and show no signs of the AC effect. Probably, the electromigration force is not a dominant instability mechanism at low biases and its reduction by the AC effect little affects the contact lifetime.

研究分野：ナノ構造物理

キーワード：金属単原子接点 接点安定性 交流安定性 エレクトロマイグレーション

1. 研究開始当初の背景

1個の金属原子で電極を架橋した単原子接点は究極の微小接点であり、その特異な電子伝導を活用した単原子スイッチは既に実デバイスへの応用が実現されている[1]。素子を実際にデバイスに組み込む際には、その動作範囲を保証する最大定格を知ることが必要であり、単原子接点の場合には、接点が安定に保たれる最大電流 / 最大電圧が最も重要な定格となる。いくつかの金属については、既に単原子接点の高バイアス安定性を調べる実験が行われており、破断電圧の値も報告されている[2-5]。しかし従来の研究は直流バイアス下における安定性を対象としており、実デバイスで使用されるパルスや高周波信号に対する単原子接点の安定性は手つかずのままとなっている。高バイアス下で微細な接点や配線を不安定にする主要な要因の一つは接点原子のelectromigration (EM) であり、LSI配線の信頼性の観点から微細金属配線のEMに関して、これまでに多大の研究が行われてきている。その結果、微細な接点や配線のEM耐性は直流と交流とで異なり、一般に信号の周波数が高くなるにつれて接点や配線の寿命が長くなることが明らかにされている[6]。単原子接点の場合にも、EMは高バイアス下にある接点を不安定にする主要な要因であり、従って微細配線と同様に交流信号下にある単原子接点は直流の場合よりも優れた高バイアス安定性を示すことが期待される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、交流信号下にある単原子接点の高バイアス安定性を実験的に調べ、信号が交流であることによって実際に安定性が向上するか否かを明らかにすることにある。具体的にはAuの単原子接点を対象とし、接点の破断電圧および寿命をRF域で測定する研究を行った。

3. 研究の方法

Au単原子接点の作製にはMCBJ法を用いた。この方法では、フレキシブル基板上に金属細線を接着し、基板を反らせて細線を破断する。基板の反りをピエゾアクチュエータで行うことにより、破断した細線の再接触・再破断を原子レベルで制御しながら接点作製を行うことが可能になる。今回はMCBJ法によりAuの原子サイズ接点を実現し、その後接点を放置して自発的に接点が破断して行く過程を利用してAu単原子接点を得ている。

交流破断電圧の測定系を図1に示す。全体はソース/メータによる直流測定回路と発信器/検波器による交流測定回路とから構成されており、両者を同軸リレーで切り替えて使用する。最初は直流回路を使用し、接点電流をモニターしながら接点破断を進めてゆく。電流がAuの単原子コンダクタンスに対応する値になったところで回路を交流回

路に切り替え、交流バイアスの振幅を増加させてゆく。接点電流はオシロスコープでモニターし、接点破断が観測された時の交流バイアスの振幅から破断電圧を求める(図1の右パネルのa, b参照)。実際には交流接点電流を固定抵抗により電圧に変換し、これを検波して振幅のみを観測している。図2は観測された信号の一例であり、信号は交流バイアスの振幅増加とともに上昇し、接点破断により急速に低下している。この信号のピーク時のバイアス振幅が、破断電圧(この例では0.61 V)を与える。

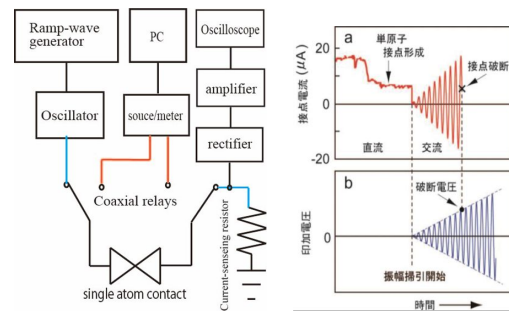


図1. 交流破断電圧測定の様式図。

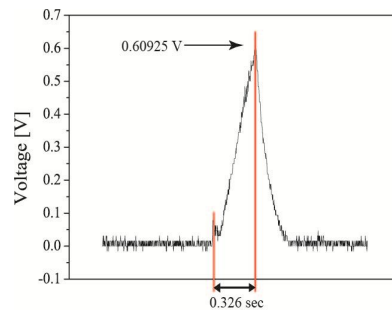


図2. 信号波形の一例。

寿命測定には図3に示す測定系を用いた。Au単原子接点の生成はMCBJ法で行い、固定振幅の交流バイアス下で接点電流を検波してコンダクタンスを測定する。接点が単原子コンダクタンスを維持している時間から接点寿命を求めた。

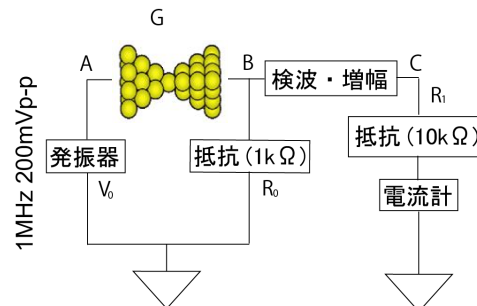


図3. 交流バイアス下での寿命測定の様式図。

4. 研究成果

(1) 単原子接点の交流破断電圧

交流破断電圧の測定は室温大気中および液体ヘリウム温度で行った。測定周波数は室

温大気中では 10, 20, 50, 100 kHz であり, 各周波数においてそれぞれ 50 個のデータを取得した. 液体ヘリウム温度での測定周波数は 10 kHz, データ点数は 64 である.

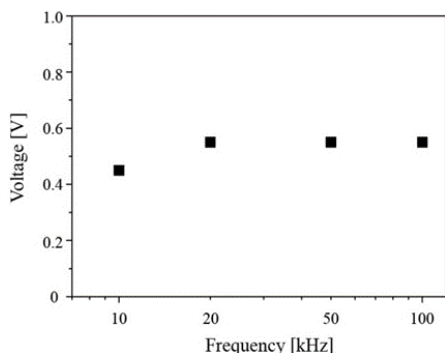


図 4. 室温における Au 単原子接点の破断電圧の周波数依存性.

図 4 は室温大気中における破断電圧の平均値の周波数依存性である. 図に見られるように破断電圧は周波数に依存しておらず, ほぼ 0.5 V 程度の一定値となっている. この破断電圧は室温での Au 単原子接点の直流破断電圧 0.9 V [3] よりも低い. また液体ヘリウム温度・10 kHz における破断電圧の分布は図 4 に示されている. 破断電圧の平均値は約 0.7 V であり, 室温の値よりも高くなっているが, この場合にも測定結果は Smit ら [2] によって測定された直流破断電圧 1.2 V を下回っている. 従って室温でも 4 K においても, 単原子接点の高バイアス安定性が交流信号下で向上する現象は観測されなかった.

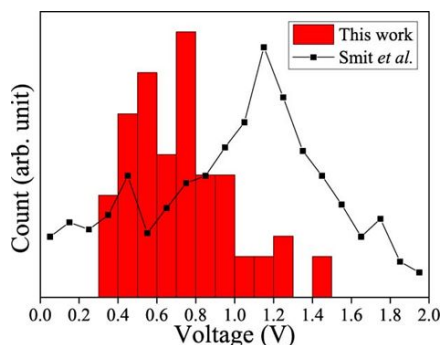


図 5. 液体ヘリウム温度・10 kHz における Au 単原子接点の破断電圧分布. 実線は Smit ら [2] による直流での測定結果.

金属微細配線の高バイアス安定性が周波数とともに向上する理由は, 交流では EM による原子の駆動力の向きも交替して, その時間平均がゼロになるためであると考えられている. このような交流による EM の時間平均減殺効果が働くためには, 交流の周波数が原子のホッピング周波数よりも高くなければならない. 原子サイズ接点の場合, 電極原子のホッピング周波数は接点コンダクタンスの 2 準位揺らぎの観測から得られており, 周波数がバイアス電圧とともに上昇するこ

とが明らかにされている [7,8]. ホッピング周波数は温度にも依存しているが, Au 接点の場合, 周波数が 100 kHz に達するバイアス電圧は 77 K で約 0.6 V である [7]. 室温の測定では, 破断電圧の領域における原子のホッピング周波数は kHz 域をはるかに超えていると考えられ, 100 kHz までの測定では交流による EM の減殺効果は機能しないことがわかる. 液体ヘリウム温度でも事情は同様であり, ホッピング周波数が 10 kHz に達するバイアス電圧は約 0.8 V で直流破断電圧よりも低くなっている [8]. このような理由により, 今回の交流測定では, 破断電圧に対する交流の効果は顕れなかったと考えられる.

(2) 交流バイアス下での単原子接点の寿命

破断電圧測定では図 2 に示すようにバイアス電圧を増加させてゆくの, それに伴う原子のホッピング周波数の上昇を避けることができない. そこでバイアス電圧を低く保つことのできる接点寿命の測定を交流バイアス下で行い, 単原子接点の交流安定性を調べることにした.

接点寿命の測定系は図 3 に示されている. 図示されているように交流の振幅を 200 mVpp とし, 周波数は 1 MHz とした. 測定は室温・大気中で行った.

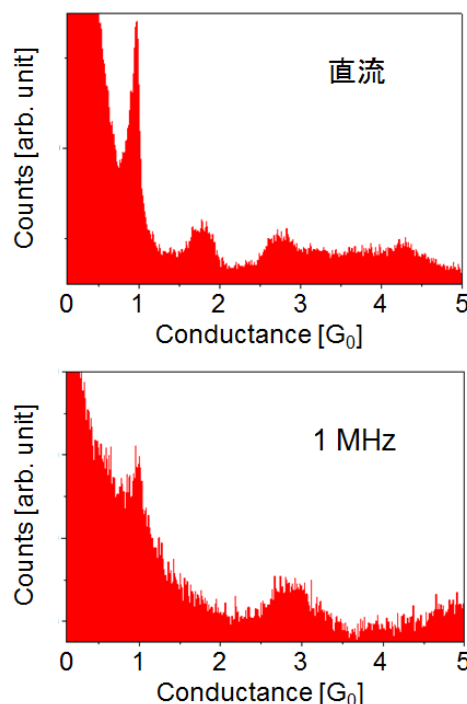


図 6. 直流および 1 MHz の交流バイアス下で測定された Au 接点のコンダクタンスヒストグラム.

図 6 に測定から得られた Au 接点のコンダクタンスヒストグラムを示す. コンダクタンスの単位は量子単位 G_0 である. Au の単原子コンダクタンスは $1G_0$ であり, 直流のヒストグラムでは, $1G_0$ の位置にピークが現れている. これが Au 単原子接点によるピークであ

る .1 MHz の交流バイアス下のヒストグラムにおいても、強度は弱いながら単原子接点による 1Go ピークが見られる。実験ではこの 1Go コンダクタンスを示す接点状態の持続時間を単原子接点の寿命 とし、その分布を求めた。図 7 に $\log \tau$ の分布を示す。

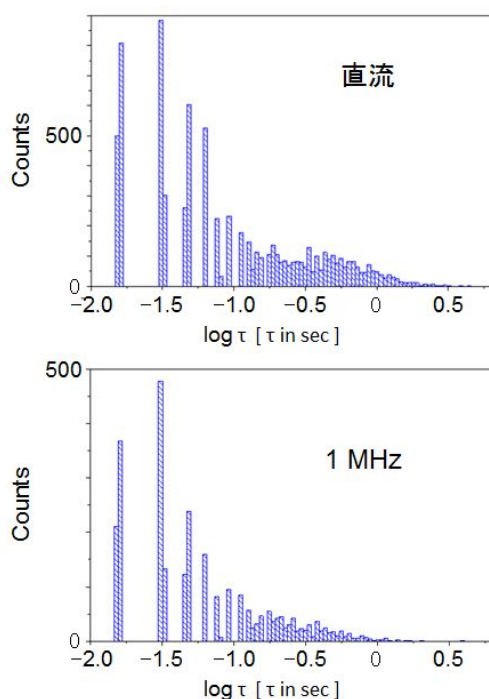


図 7 .直流および 1 MHz の交流バイアス下における Au 単原子接点の寿命 τ の分布。

図に見られるように、どちらの分布図においても $\log \tau$ の分布は単調に減少しており、この振舞いは従来の Au 単原子接点の寿命測定の結果[9]と定性的に一致している。また直流の分布と 1 MHz における分布を比較すると、直流における分布の方が裾の強度がやや大きくなっているが、両者に有意な差は見られない。従って少なくとも 1 MHz の周波数までは、交流による延命効果は観測されず、期待された交流バイアス下での単原子接点の安定性向上は検証されなかった。

(3) 考察およびまとめ

交流による効果が破断電圧に現れなかった理由は、既に述べたようにバイアス電圧の上昇に伴う原子のホッピング周波数の増加にあると考えられる。そこでここでは低バイアスで行われた寿命測定でも交流効果が見られなかった原因について考察する。

最初に原子のホッピング周波数の問題であるが、低温での観測結果[8]から推定される室温における原子のホッピング周波数は、200 mVpp では約 1.5 kHz である。従って測定に用いた周波数 1 MHz はこれよりも十分に高く、原子のホッピング周波数は問題にならないと考えられる。ただし原子のホッピング周波数は非常に幅広く分布しており、分布の裾の部分では、測定周波数を超えている可

能性も否定できない。より確実にホッピング周波数を上回る周波数で測定を行うためには GHz 域のバイアスを使用する必要があると思われるが、この帯域では接点の浮遊容量などの影響が大きくなるため、実験は技術的に困難なものとなる。

第 2 の点は、接点の内部張力の問題である。破断接合法で作られる単原子接点には内部張力が作用しており、バイアス電圧とともに接点を不安定化する要因となっている。交流による接点の安定化は交流による EM の時間平均減殺効果によるものであり、内部張力とは無関係である。従って内部張力が接点不安定化の主因となっている場合には、交流による効果は現れないことになる。バイアス電圧の影響を強くするためにはバイアス電圧を高くする必要があるが、原子のホッピング周波数も上昇する問題が再浮上する。現在のところ単原子接点の内部張力については判明していない点が多く、内部張力の問題の解決には今後の研究が必要である。

今回、Au の単原子接点を対象として、交流バイアスの印加により接点の安定性が向上するか否かを明らかにする実験研究を行った。接点の交流破断電圧については 100 kHz まで、接点寿命については 1 MHz での測定を行ったが、何れの場合にも交流による影響は観測されなかった。交流効果を観測するためには、(実施が困難であるが)高バイアスでの原子のホッピング周波数を超える高周波での測定が必要であると考えられる。

参考文献

- [1] *International Symposium on Atomic Switch: Invention, Practical Use and Future Prospects*, Abstracts, http://www.nims.go.jp/mana/atomswitch2017/pdf/AtomicSwitch2017_Booklet.pdf
- [2] R. H. M. Smit, C. Untiedt, J. M. van Ruitenbeek, *Nanotechnology* **15**, S472. (2004).
- [3] D. Miura, K. Iwata, S. Kurokawa, and A. Sakai, *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* **7**, 891 (2009).
- [4] A. Sakai, in *Nanowires*, p. 439, edited by A. Hashim (InTech, Rijeka, 2011).
- [5] A. Aiba S. Kaneko, S. Fujii, T. Nishino, and M. Kiguchi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 21586 (2016).
- [6] J. Tao, N. W. Cheung, and C. Hu, *IEEE Electron Dev. Lett.* **14**, 554 (1993)..
- [7] M. Tsutsui, Y. Teramae, S. Kurokawa, and A. Sakai, *Appl. Surf. Sci.* **252**, 8677 (2006)..
- [8] M. Tsutsui, S. Kurokawa, and A. Sakai, *Nanotechnology* **17**, 5334 (2006)..
- [9] R. Suzuki, M. Tsutsui, D. Miura, S. Kurokawa, and A. Sakai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, 3694 (2007)..

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計5件)

S. Wakasugi, S. Kurokawa, and A. Sakai, "Jump to contact of hcp nanowires", Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, **55**, 128002 (2016). doi: 10.7567/JJAP.55.128002

N. Fujita, S. Kurokawa, and A. Sakai, "Formation of icosahedral nanowires", Phys. Status Solidi B, 査読有, **253**(6), 1149-1155 (2016). doi: 10.1002/pssb.201552544

N. Parveen, Y. Ishino, S. Kurokawa, and A. Sakai, "Single-atom conductance of Y", Physica B, 査読有, **488**, 57-61 (2016). doi: 10.1016/j.physb.2016.02.002

N. Parveen, S. Kurokawa, and A. Sakai, "On the Single-Atom Conductance of Ti", e-J. Surf. Sci. Nanotech. 査読有, **13**, 435-439 (2015). doi: 10.1380/ejsnt.2015.435

S. Aoyama, S. Kurokawa, and A. Sakai, "High-frequency signal transmission through single-atom contacts of Au and Pt", Appl. Phys., 査読有, **106**(25), 123507 (1-4) (2015). doi: 10.1063/1.4916327

〔学会発表〕(計12件)

酒井 明, "HCP金属接点におけるjump to contact", 日本物理学会2014年秋季大会, 2014年9月9日, 春日井市.

S. Murayama, "Stability of Single-Atom Contacts under AC Biases", International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, ISSS-7, 2014年11月3日, 松江市.

Y. Ishino, "Single-Atom Conductance of Y", International Symposium on Surface Science and Nanotechnology, ISSS-7, 2014年11月3日, 松江市.

酒井 明, "Icosahedral nanowireの形成過程", 日本物理学会2015年秋季大会, 2015年9月18日, 吹田市.

田窪 舜, "金属原子サイズ接点のmechanical annealing", 2015年真空・表面科学合同講演会, 2015年12月2日, つくば市.

若杉晋作, "圧縮応力下における鉛単原子接点の高バイアス安定性", 2015年真空・表面科学合同講演会, 2015年12月2日, つくば市.

A. Sakai, "High-bias stability of single-atom contacts of metals under tensile and compressive contact forces", 9th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing, PRICM9, 2016年8月3日, 京都市.

酒井 明, "接合の接触過程で形成された金属単原子接点の破断電圧", 日本物理学会

2016年秋季大会, 2016年9月13日, 金沢市.

A. Sakai, "Improved high-bias stability of single-atom contacts formed by junction closing", 13th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, ACSIN2016, 2016年10月10日, ローマ市.

別所祐治, "金属単原子接点の破断の温度依存性", 2016年真空・表面科学合同講演会, 2016年11月29日, 名古屋市.

Y. Bessho, "Temperature dependence of the fracture of single atom contacts of metals", Symposium on Surface Science & Nanotechnology -25th Anniversary of SSSJ Kansai- (SSSN-Kansai), 2017年1月24日, 京都市.

A. Sakai, "Improved high-bias stability of single-atom contacts formed by junction closing", American Physical Society March Meeting, 2017年3月17日, ニューオーリンズ市.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

酒井 明 (SAKAI, Akira)
京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 80143453

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3)連携研究者 ()

研究者番号：