

氏名(本籍)	増田秀樹(東京都)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第6411号
学位授与年月日	平成25年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	銀とタングステンナノメートル接点の構造と物性

主査	筑波大学教授	工学博士	木塚徳志
副査	筑波大学教授	工学博士	日野健一
副査	筑波大学准教授	Ph.D	小泉裕康
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	鈴木修吾
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	小林伸彦

論文の内容の要旨

本論文では、その場高分解能透過電子顕微鏡法を用いて、コンダクタンスの量子化を示す銀ナノメートル接点と量子化を示さないタングステンナノメートル接点の構造ダイナミクス、電気伝導特性、および機械的特性が明らかにされた。実験には、高分解能透過電子顕微鏡を母体とし、走査トンネル顕微鏡と原子間力顕微鏡の機能を組み入れたその場電子顕微鏡が用いられた。この顕微鏡の試料室内で、銀薄膜を堆積させたシリコンカンチレバーの探針と、アルゴンイオン研磨によりナノメートルサイズまで微細化した銀の薄板を、あるいはタングステンの薄板同士を室温で接触させて、銀あるいはタングステンの単一組成のナノメートル接点がそれぞれ作製された。その後、片側の試料をピエゾ駆動により引き離し、接点を変形させた。この過程でナノメートル接点に直流あるいは交流電圧が印加され、コンダクタンスが二端子法で測定された。また、銀ナノメートル接点に作用する力が光でこの方式で測定された。

特定のコンダクタンス値、特に量子化したコンダクタンス値を示す銀ナノメートル接点を観察するために、接点両側の電極位置を設定したコンダクタンス値を示すように制御する帰還回路が、変形観察に導入された。コンダクタンス帰還回路を用いた観察から、コンダクタンスヒストグラム中の量子化単位 ($2e^2/h$; e は電子の電荷、 h はプランク定数) に対応するピークに対応する特定のコンダクタンス値には、1つの接点構造ではなく、異なる幅をもつ数種類の接点構造が寄与していることが見出された。特に、従来ではコンダクタンスが量子化単位である接点は、単原子幅の接点であると考えられてきたが、この実験では、単原子接点の他に、2原子幅および3原子幅の接点もこの量子化単位に対応するコンダクタンスを示すことがわかった。

銀ナノメートル接点の構造と電流-電圧特性の関係が調べられ、銀ナノメートル接点のコンダクタンスの非線形成分は負の値を持ち、接点の幅が減少すると、その絶対値は増加した。ただし、ナノメートル接点が細くなり、原子ワイヤーに変化すると、この非線形成分は正に変化した。銀ナノメートル接点のコンダクタンスの非線形性は金ナノメートル接点のそれと類似し、白金ナノメートル接点のそれとは異なっていた。このことから、つまり、コンダクタンスは、接点を構成する元素の電子配置の特徴に対応していることが見出された。

銀ナノメートル接点の実験では、コンダクタンス測定と同時に、ナノメートル接点に作用する応力が測定された。変形時の歪みが高分解能観察から見積もられ、応力-歪み関係が得られた。この結果から、ナノメートル接点の一軸引っ張り変形に対する弾性定数であるヤング率が、接点幅がおよそ1 nm以下に減少すると増加することが見出された。得られた臨界剪断応力の値から、接点幅がおよそ1.5 nm以下に減少すると、ナノメートル接点の変形機構は、転位すべりから同時すべりに変化することが示唆された。

銀ナノメートル接点の引っ張り変形過程で、銀原子ワイヤーが形成され、その原子配列が観察された。この構造観察と同時に、コンダクタンスが測定された。銀の原子ワイヤーで、こうした原子配列とコンダクタンスの対応関係が実測されたのは初めてであった。これまでは原子ワイヤーのコンダクタンスは量子化単位のコンダクタンスであると考えられてきたが、本研究で観察された銀原子ワイヤーのコンダクタンスは常にその予想されていた値の十分の一以下であることが明らかにされた。また、引っ張り変形ではなく、原子拡散によるナノメートル接点の微細化によって原子ワイヤーが形成することが見出された。つまり、この結果から、原子間結合が強く、電極から原子が引き出されにくいために原子ワイヤーが形成されにくい元素でも、原子ワイヤーが形成されることを示された。

銀ナノメートル接点に高電圧を印加して、エレクトロマイグレーションによる接点の破断過程が調べられた。銀ナノメートル接点におけるエレクトロマイグレーションの臨界電圧は45 mVであった。破断時の電圧と、その結果形成されたナノギャップ間隔は、100 ~ 200 mVと200 ~ 300 mVの2つの電圧範囲で分けられた。低電圧(100 ~ 200 mV)では、接点幅が6 nmまでのナノメートル接点では、その大きさによらず、ギャップ間隔は 1.3 ± 0.8 nmになった。これに対して、高電圧(200 ~ 300 mV)では、形成されるギャップ間隔のばらつきが3 ~ 13 nmまで大きくなった。この観察から、求める間隔のナノギャップをエレクトロマイグレーションにより作製できることがわかった。また、作製されるギャップの間隔を単一分子サイズに調節すれば、単一分子接合の組み立てが可能になることが示された。

タングステンナノメートル接点の引っ張り変形過程が原子レベルで初めて観察され、同時にコンダクタンスが測定された。複数のタングステンナノメートル接点で測定されたコンダクタンスを積算したヒストグラムには、量子化単位のコンダクタンス値付近にカウントが集まった。この傾向は従来のタングステンナノメートル接点のコンダクタンス測定の結果と一致した。また、この過程で観察された原子ワイヤーに対して、原子モデルを作成し、コンダクタンスを第一原理法に基づいて計算した。これらの結果から、実験・計算の両面で、原子ワイヤーの長さが増加するとコンダクタンスが減少することがわかった。原子ワイヤーに含まれる一部の原子間の距離が増加すると、原子ワイヤー全体のコンダクタンスが減少することが示された。

原子拡散しにくいタングステンのナノチップを用いて、その接触過程における原子配列変化とコンダクタンスの変化が調べられた。タングステンナノチップ間の接触では、従来金属ナノチップ間の接触過程で観測されていた自発的な跳躍的接触(jump-to-contact)は起きず、ナノチップ間のギャップを原子間隔以下で制御できることが見出された。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文では、銀ナノメートル接点とタングステンナノメートル接点の構造と物性を明らかにすることを目的にして、実験研究が実施された。用いられた手法は、ナノメートル接点研究のために独自に開発されたその場高分解能電子顕微鏡法であり、他の手法では不可能なナノメートル接点の原子ダイナミクス観察と物性評価がなされている。コンダクタンス帰還回路を用いたナノメートル接点構造の連続観察によって、従来ナノメートル接点研究で大きな問題となっていた、量子化に対応するコンダクタンス値を示す接点構造が明らかにされた。さらに、体心立方格子構造の金属ナノメートル接点の原子配置が初めて観察され、原子間距離

とコンダクタンスの相関関係が導かれた。すなわち、本研究で得られた成果は、従来の実験手法の限界により停滞していたナノメートル接点の研究の発展を促進するとともに、これまで面心立方格子構造の金属に限られていた構造観察の材料種を大きく拡張し、ナノメートル接点に関わる物理現象の一般側を導くきっかけを与えている。ナノメートル接点の基本的構造と特性に関して得られた本研究の成果は、今後のナノメートル接点に関わる原子・分子エレクトロニクスを展開する工学的基礎を築き、工学の発展に大きく寄与すると期待される。

平成 25 年 2 月 22 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。