

平成17年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究状況報告書

ふりがな（ローマ字）		HASEGAWA SHUJI					
①研究代表者 氏名		長谷川 修司		②所属研究機関・ 部局・職			
				東京大学・大学院理学系研究科・助 教授			
③研究 課題 名	和文	グリーン関数 STM の開発とそれによるナノ電子輸送ダイナミクスの研究					
	英文	Development of Green's Function STM and Application to Study of Nano Electronic Transport Dynamics					
④研究経費		平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	平成19年度	総合計
17年度以降は内約額 金額単位：千円		43,200	15,600	10,900	10,900	4,300	84,900
⑤研究組織（研究代表者及び研究分担者）							
氏名		所属研究機関・部局・職		現在の専門		役割分担（研究実施計画に対する分担事項）	
長谷川 修司		東京大学・大学院理学系研究科・助教授		表面物理学		研究の総指揮・装置の設計・実験・データの解析検討 装置の設計・実験・データの解析検討	
松田 巖		東京大学・大学院理学系研究科・助手		表面物理化学			
⑥当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）							
<p>本研究の目的は、我々が今まで開発・発展させてきた「4 探針 STM（走査トンネル顕微鏡）法」をさらに高度化した「グリーン関数 STM 法」を開発し、それをさまざまなナノメートルスケール構造体の測定に適用して、その有用性を実証することにある。グリーン関数 STM 法とは、試料表面上にトンネルコンタクトさせた 2 本以上の STM 探針を電子のコヒーレンス長より短い間隔にまで近づけ、一つの探針から与えた電気的刺激の応答を他の探針で測定することによって、試料電子系の非局所的な応答、すなわちグリーン関数を直接測定するという手法である。グリーン関数を直接測定できれば、電子系のさまざまな微視的情報を得ることができ、ある意味で究極的な物性測定となる。また、この手法は生来的にナノメートルスケールでの測定なので、ナノサイエンス・テクノロジー研究の基本的手段となると期待できる。</p>							

⑦これまでの研究経過 (研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。)

グリーン関数 STM 装置 (極低温型 4 探針 STM 装置) を設計し、製作した。図 1 は、その設計概念図であり、図 2 は完成した装置の外観写真である。図 3 には心臓部である 4 探針 STM ヘッド機構ステージの写真を示す。

装置本体の超高真空槽では、 10^{-9} [Pa](10^{-11} [Torr])以下の真空度を保つこと、試料および探針のトランスファー、各部の温度測定、通電過熱、蒸着などの試料作成、試料準備室での RHEED 観察など、基本的実験操作が可能であることを確認した。

冷却機構は、STM 機構を取り付けるステージが液体窒素において 74K を 24 時間以上、液体ヘリウムにおいて 10K を 23 時間以上、寒剤を追加せずに維持できることを確認した。また、この低温下においても、温度変化による歪みや結露に気を付ければ、SEM (走査電子顕微鏡) 観察が可能であることも確認した。だが、試料準備室の冷却機構では、冷却効率および試料部までの熱伝導率に問題があり、現時点では期待通りの冷却性能が得られていないため、現在その部品の改良中である。

SEM (走査電子顕微鏡) の分解能は設置当初 $1 \mu\text{m}$ 程度であったが、電気回路の修正により、 200 nm 程度にまで改善した (図 4)。実験室内および建物において、電磁ノイズと床振動が予想を上回っていたためと思われる。性能向上のため、現在 SEM のメーカー (APCO 社) において、電子銃本体の振動対策と電磁ノイズ対策を行っており、さらなる分解能向上をはかっている。

4 探針 STM 機構は、4 つの STM ユニット全てが完成した。微動機構は、常温において $\pm 1 \mu\text{m}$ 以上、液体窒素温度において $\pm 200 \text{ nm}$ 以上動くことを確認した。Slip-Sliding による粗動機構は常温、低温ともに 1 ステップ 50 nm 程度から動作することを確認した。

図 5 は、4 本のタングステン探針を近づけたときの SEM 像である。機構が複雑なため、探針部と機構部に $1 \text{ G}\Omega$ 程度のリークが見られたが、ガード電極をつけることにより、現在は $100 \text{ G}\Omega$ 以上まで改良され、STM 測定に必要な微弱なトンネル電流測定には十分となった。各 STM ユニットでトンネルコンタクトを安定して維持することに成功した。はじめ STM によって原子分解能の像を得ることはできなかった。それは探針ホルダー部に振動を誘起する構造があったため、スキャンにより探針自身が振動してしまうためだとわかった。その後ユニソク社において探針付近の構造を改良し、剛性を向上させて室温で原子分解能を得ることに成功した。

⑧特記事項で述べるが、タングステン探針の先端に金属被覆したカーボンナノチューブ (CNT) を付着させた「金属被覆 CNT 探針」の開発に成功し、これを用いて探針間隔を 50 nm 以下に縮めることに成功し、グリーン関数測定の実現に近づいた。

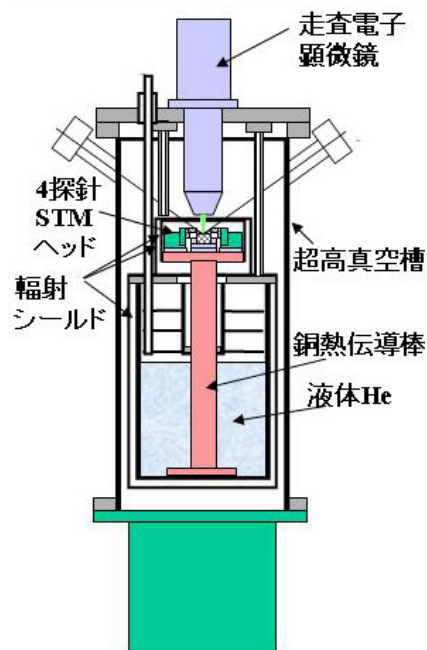


図 1. グリーン関数 STM 装置本体の構造を示す模式図。



図 2. グリーン関数 STM 装置の写真。



図 3. 4 探針 STM ヘッド機構

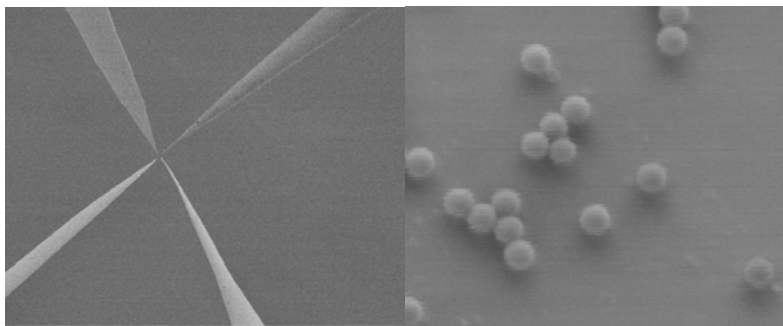


図 5. STM 探針のマニピュレーション。

図 4. $0.5 \mu\text{m}$ LATEX 球の SEM 像。

⑧特記事項 (これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。)

(1) 多探針 STM に最適な探針形状および探針の角度

多探針 STM においては、探針間の最近接距離が性能の重要な目安となる。一般に 2 本の探針間の最小探針間距離は探針先端の曲率半径によって制限され、現実的には 100 nm 程度以上である。さらに小さな探針間距離を実現するためにはカーボンナノチューブ(CNT)などアスペクト比の極めて大きい探針の利用が考えられるので、次の項で述べるように、我々は CNT 探針の開発も同時に進めている。その他に、実際のアプリケーションでは探針先端近傍の突起や、探針の研磨時に生じる肩構造のため、探針同士が接触してしまうことが多い。これは将来 CNT 探針が実用化された場合でも同様で、CNT 探針の優位性を多探針 STM で活かさない危惧がある。

そのため本研究では、電解研磨によるタングステン探針製作時に、探針と電解液面の位置を動的に変える、特殊な研磨方法を用いることにより、探針全域にわたってアスペクト比の大きい探針を作成する方法を考案して用いている。これに関して特許出願を試みたが、目的は異なるが類似の技術がすでに公開されていることが判明し、出願を断念した。

また、探針と探針、探針と試料間の角度が小さいとお互いに接触する危険性が増す。探針が対向した配置での 2 探針 STM においては探針と試料間の角度は 60 度、探針が正方に並んだ 4 探針 STM においては探針と試料間の角度は約 35.3 度が探針と探針、探針と試料が最も接触しにくい角度であることを見出した。本装置では、2 探針動作においては 60 度の角度に、4 探針動作においては 35.3 度の角度に針を固定できる 2 種類の針ホルダを用いている。この件の特許出願を準備中である。

(2) 金属被覆カーボンナノチューブ(CNT)探針の開発と 4 探針 STM への採用

平成16年10月より、科学技術振興機構の先端計測分析技術・機器開発事業に、本研究の代表者が代表を勤めるプロジェクト「4探針STMの制御系および多機能ナノチューブ探針の開発」が採択され、大阪大学・大学院工学研究科 片山光浩教授および(株)ユニソクとの共同開発研究を、本研究と並行して進めることになった。本基盤研究(S)では、極低温型4探針STM装置(グリーン関数STM装置)本体の開発を主に行うのに対し、上記の先端計測分析技術・機器開発事業では、その制御系およびCNT探針の開発を行う。両者は、本研究が目指すグリーン関数計測には不可欠の要素技術であり、両者ともに現在精力的に進めている。下の図6は、3 nm 膜厚のW被膜をコートした2本のCNT探針を4探針STM装置に装着し、その接近過程をSEMで観察した結果である。最小探針間隔を 50 nm 程度まで小さくすることに成功した。この間隔は、従来のW探針での最小探針間隔(約 200 nm)をはるかに凌ぐ値であり、SEMの分解能向上により、さらに20 nm 程度まで縮めることができると期待している。この程度の探針間隔になると電子のコヒーレンス長と同程度になるため、本研究の目的であるグリーン関数計測の実現が現実味を持ってきた。

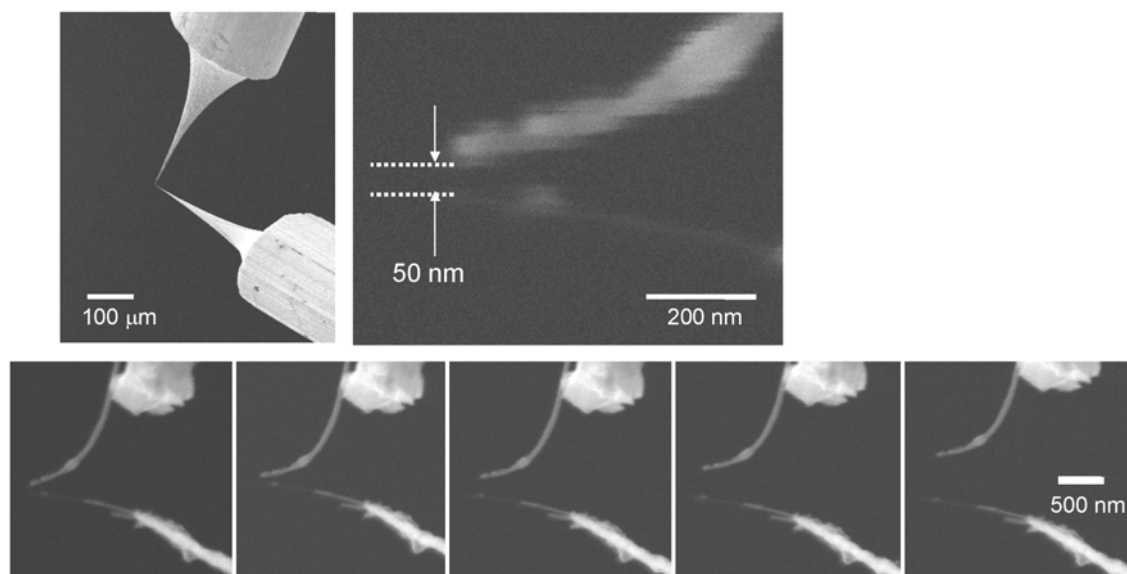


図6. タングステン被覆カーボンナノチューブ探針2本を接近させているときのSEM像。

⑨研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(掲載が確定しているものを含む。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。)

【発表論文】

- (1) Y. Murata, S. Yoshimoto, M. Kishida, D. Maeda, T. Yasuda, T. Ikuno, S. Honda, H. Okado, R. Hobara, I. Matsuda, S. Hasegawa, K. Oura, and M. Katayama:
"Exploiting Metal Coating of Carbon Nanotubes for Scanning Tunneling Microscopy Probes"
 Japanese Journal of Applied Physics **44**, in press (July 2005).
- (2) I. Matsuda, T. Hirahara, M. Konishi, C. Liu, H. Morikawa, M. D'angelo, S. Hasegawa, T. Okuda, and T. Kinoshita:
"Evolution of Fermi surface by electron doping into a free-electron-like surface state",
 Physical Review **B 72**, in press (July 2005).
- (3) C. Liu, S. Yamazaki, R. Hobara, I. Matsuda, and S. Hasegawa
"Two-Dimensional Liquid-Solid Phase Transition Observed on Atomic Scale"
 Physical Review **B 71**, 041310(R) (2005).
- (4) A. A. Saranin, A. V. Zotov, I. A. Kuyanov, V. G. Kotlyar, M. Kishida, Y. Murata, H. Okado, I. Matsuda, H. Morikawa, N. Miyata, S. Hasegawa, M. Katayama, and K. Oura:
"Long-periodic modulations in the linear chains of Tl atoms on Si(100)"
 Physical Review **B 71**, 165307 (2005).
- (5) C. Liu, I. Matsuda, and S. Hasegawa:
"STM observation at initial stage of Cs adsorption on Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag surface",
 Surface and Interface Analysis **37**, 101-105 (2005).
- (6) M. Konishi, I. Matsuda, C. Liu, H. Morikawa, and S. Hasegawa:
"A $\sqrt{21}\times\sqrt{21}$ phase formed by Na adsorption on Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag surface and its electronic structure",
 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **3**, 107-112 (2005).
- (7) I. Matsuda, M. Ueno, T. Hirahara, R. Hobara, H. Morikawa, and S. Hasegawa,
"Electrical Resistance of a Monatomic Step on a Crystal Surface",
 Physical Review Letters **93**, 236801 (2004).
- (8) T. Tanikawa, I. Matsuda, T. Kanagawa, and S. Hasegawa,
"Surface-state electrical conductivity at a metal-insulator transition on silicon",
 Physical Review Letters **93**, 016801 (2004).
- (9) H. Okino, R. Hobara, I. Matsuda, T. Kanagawa, and S. Hasegawa,
"Non-metallic transport of a quasi-one-dimensional metallic Si(557)-Au surface",
 Physical Review **B 70**, 113404 (2004).
- (10) H. Morikawa, I. Matsuda, and S. Hasegawa:
"Direct observation of soliton dynamics in charge density waves on a quasi-one-dimensional metallic surface",
 Physical Review **B 70**, 085412 (2004).
- (11) T. Hirahara, I. Matsuda, M. Ueno, and S. Hasegawa,
"The effective mass of a free-electron-like surface state of the Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag investigated by photoemission and scanning tunneling spectroscopies",
 Surface Science **563**, 191-198 (2004).
- (12) R. Hobara, S. Yoshimoto, T. Ikuno, M. Katayama, N. Yamauchi, W. Wongwiriyan, S. Honda, I. Matsuda, S. Hasegawa, and K. Oura:
"Electronic Transport in Multiwalled Carbon Nanotubes Contacted with Patterned Electrodes"
 Japanese Journal of Applied Physics **43**, L1081-L1084 (2004).
- (13) T. Hirahara, I. Matsuda, and S. Hasegawa,
"Photoemission Structure Factor Effect for Fermi Rings of the Si(111)- $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Ag Surface", e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **2**, 141-145 (2004).

- (14) F. Shimokoshi, I. Matsuda, S. Hasegawa, and S. Ino,
"Successive Phase Transitions Induced by Ca and Sr Adsorptions on a Si(111) surface"
 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **2**, 178-185 (2004).
- (15) I. Matsuda, T. Tanikawa, S. Hasegawa, H. W. Yeom, K. Tono, and T. Ohta,
"Quantum-Well States in Ultra-Thin Metal Films on Semiconductor Surfaces",
 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **2**, 169-177 (2004).
- (16) T. Kanagawa, R. Hobara, I. Matsuda, T. Tanikawa, A. Natori, and S. Hasegawa,
"Anisotropy in conductance of a quasi-one-dimensional metallic surface state measured by square micro-four-point probe method",
 Physical Review Letters **91**, 036805 (2003).
- (17) I. Matsuda, H. Morikawa, C.-H. Liu, S. Ohuchi, S. Hasegawa, T. Okuda, T. Kinoshita, C. Ottaviani, A. Cricenti, M. D'angelo, P. Soukiassian, and G. LeLay:
"Electronic evidence of symmetry breakdown in surface structure",
 Physical Review B **68**, 085407 (August, 2003).
- (18) T. Tanikawa, K. Yoo, I. Matsuda, and S. Hasegawa,
"Non-Metallic Transport Property of the Si(111) 7×7 Surface",
 Physical Review B **68**, 113303 (2003).
- (19) S. Hasegawa, I. Shiraki, F. Tanabe, R. Hobara, T. Kanagawa, T. Tanikawa, I. Matsuda, C. L. Petersen, T. M. Hansen, P. Boggild, F. Grey:
"Electrical conduction through surface superstructures measured by microscopic four-point probes",
 Surface Review and Letters **10**, 963-980 (2003).
- (20) C. Liu, I. Matsuda, H. Morikawa, H. Okino, T. Okuda, T. Kinoshita, and S. Hasegawa,
"Si(111)-√21×√21-(Ag+Cs) surface studied by scanning tunneling microscopy and angle-resolved photoemission spectroscopy",
 Japanese Journal of Applied Physics **42**, 4659-4662 (2003).
- (21) M. Ueno, I. Matsuda, C. Liu, and S. Hasegawa,
"Step edges as reservoirs of adatom gas on a surface",
 Japanese Journal of Applied Physics **42**, 4894-4897 (2003).
- (22) T. Tanikawa, I. Matsuda, R. Hobara, and S. Hasegawa,
"Variable-temperature micro-four-point probe method for surface electrical conductivity measurements in ultrahigh vacuum",
 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **1**, 50-56 (2003).
- (23) S. V. Ryjkov, S. Hasegawa, V. G. Lifshits,
"Epitaxial Growth of Ag on Si(111)-4x1-In Surface Studied by RHEED, STM, and Electrical Resistance Measurements",
 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **1**, 72-79 (2003).
- (24) H. Okino, I. Matsuda, T. Tanikawa, and S. Hasegawa,
"Formation of Facet Structures by Au Adsorption on Vicinal Si(111) Surfaces"
 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **1**, 84-90 (2003).
- (25) 長谷川修司、白木一郎、田邊輔仁、保原麗、金川泰三、松田巖：
"4探針STMの開発と表面電子輸送の測定"、
 電子顕微鏡 **38**, 36-41 (2003).

【会議・学会発表】

- (26) S. Hasegawa:
"Electrical Conduction through Atomic/Nano Wires on Silicon",
 International Conference on Nanoelectronic and Nanostructures and Carrier Interactions (NNCI),
 2005年1月31日(NTT Atsugi R&D Center, Japan).
- (27) 長谷川修司: "ナノプローブ4探針STM",
 日本表面科学会東北支部講演会、2005/Mar/10、日本大学、郡山。

- (28) 吉本真也、保原麗、松田巖、村田裕也、岸田優、生野孝、前田大輔、保田達郎、本多信一、片山光浩、尾浦憲治郎、長谷川修司:
"金属被覆カーボンナノチューブ探針の電気伝導特性",
日本物理学会第60回年次大会、2005年3月24日、東京理科大学、野田.
- (29) S. Hasegawa:
"*Electrical conduction through atomic/nano wires on silicon*",
Korean Vacuum Society, 2004年8月19日, Taegu, Korea.
- (30) S. Hasegawa:
"*Electrical Conduction through Atomic/Nano Wires on Silicon*",
IUMRS-ICA (The IUMRS International Conference in Asia)-2004, 2004年11月16日, Shinchu, Taiwan.
- (31) S. Yoshimoto, H. Okino, R. Hobara, I. Matsuda, Y. Murata, M. Kishida, T. Ikuno, D. Maeda, T. Yasuda, H. Okado, M. Katayama, K. Oura, and S. Hasegawa:
"*Electrical Characterization of Metal-Coated Carbon Nanotube Tip*",
The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy,
2004年12月9日, Atagawa, JAPAN.
- (32) Y. Murata, M. Kishida, T. Ikuno, D. Maeda, T. Yasuda, H. Okado, M. Katayama, K. Oura, S. Yoshimoto, R. Hobara, I. Matsuda, and S. Hasegawa:
"*Metal-Coated Carbon Nanotube Tip towards Multi-Tip STM Prober*",
The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy,
2004年12月9日, Atagawa, JAPAN.
- (33) H. Okino, R. Hobara, I. Matsuda, T. Kanagawa, S. Hasegawa:
"*Electronic Transport Mechanism of Si(557)-Au Surface*",
International Workshop of COE Program on 'New Horizons in Condensed Matter Physics',
2004年11月29日, University of Tokyo, JAPAN.
- (34) S. Yamazaki, I. Matsuda, H. Okino, H. Morikawa, S. Hasegawa,
"*Surface electronic transport study of a glass-crystal transition on Au/Si(111) surface*",
The Sixth Japan-Russia Seminar on Semiconductor Surfaces (JRSS-6),
2004年10月13日, Toyama University, JAPAN.
- (35) S. Hasegawa:
"*Electrical conduction through surface states on silicon*",
The 12th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12),
2004年6月23日, Congress Center, Hamamatsu, JAPAN.
- (36) H. Okino, R. Hobara, I. Matsuda, T. Kanagawa, S. Hasegawa, J. Okabayashi, S. Toyoda, M. Oshima, and K. Ono:
"*Electronic transport mechanism of Si(557) -Au surface*",
The 12th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12),
2004年6月22日, Congress Center, Hamamatsu, JAPAN.
- (37) 沖野泰之、保原麗、守川春雲、松田巖、長谷川修司, "*Au/Si(557)表面の電気伝導度の異方性I*",
日本物理学会第59回年次大会、2004年3月27日、九州大学（箱崎）.
- (38) 保原麗, 吉本真也, 松田巖, 長谷川修司, "*低温型四探針STMによる電気伝導測定*"
日本物理学会2004秋季大会 領域9 特別講演 2004年9月14日、青森大学
- (39) 山崎詩郎, 松田巖, 長谷川修司, "*Si(111)-Au表面上のガラス-クリスタル転移の電気伝導度測定*"
日本物理学会2004秋季大会 領域9 特別講演 2004年9月14日、青森大学