

メタデータ	言語: jpn
	出版者: 室蘭工業大学
	公開日: 2014-03-04
	キーワード (Ja):
	キーワード (En):
	作成者: 安達, 洋, 加藤, 達幸, 鈴木, 和郎
	メールアドレス:
	所属:
URL	http://hdl.handle.net/10258/748

安達 洋・加藤達幸・鈴木和郎

A Study of Tunneling Current through A variable Gap in A Liquid

Hiroshi Adachi, Tatuyuki Katoh and Kaazuo Suzuki

Abstract

Scanning tunneling microscopes have potential in surface analysis and are believed to be able to operate in an insulating liquid. A similar electrode structure to a scanning tunneling microscope was made and fundamental characteristics of tunneling current through an insulating liquid was examined. Measurements of the tunneling barrier shows that there is no evident difference between the tunneling currents of air and of the liquid. Although this evidence is far from the authors' expectation, this gives a confirmation that images of scanning tunneling microscopes obtained in insulating liquids can be interpreted by the same way as in vacuum.

1. はじめに

走査型トンネル顕微鏡(Scanning Tunneling Microscope, STM)は1982年スイスの IBM チュー リッヒ研究所の Binnig, Rohrer¹⁾達によって発明され,その物理学に対するインパクトの大きさ が高く評価され,1986年度のノーベル物理学賞が授与された。原子像が実空間で直接観察出来る というこの装置の極めて高い分解能は特筆に値するものである。しかもその高い分解能を,鋭い 金属の探針を機械的に走査することにより実現した点でも注目されるものである。

鋭い探針を試料表面に沿って走査して表面の凹凸を計測する測定器としては、触針型表面粗さ 計が古くから実用に供されてきたが、その分解能は最新のカタログを見ても面に垂直方向で1 nm、面内方向で100nm 程度である。通常の使用条件下ではこの程度の分解能を得るのは極めて 困難なことであって、通常はこれより1桁程度分解能が下がるものと考えた方がよい。それは、 探針の鋭さの維持に困難さが伴うためである。分解能は探針が鋭いほど高くなるが、探針を鋭く しすぎるとその機械的強度がその分だけ低下してしまうために、触針圧に耐えられなくなる。つ まり、この分解能を低下させる最大の要因は鋭い探針が触針圧に耐えられないことであって、非 接触で探針を走査すれば鋭い探針を使用することが可能となり、分解能の向上が望めることにな る。この点を指摘し、非接触で探針を走査して極めて高い分解能の表面粗さ計を Topografiner という名前のもとに、アメリカの NBS の Young が1972年に発表しており、そこに STM の原型 を見ることができる²⁾。Young の装置は基本的には STM と全く同じ構成をしており、分光用の グレーティングの溝の微細構造を計測してその高分解能性を示した。また,理論的には2nmの 分解能が可能であることを示したが,装置が外部からの振動に対して極めて敏感に影響されてし まい,とても実用の装置とは考えられないものとして,その研究は中断されてしまった。

Young の実験では試料と探針の間の距離が10nm 以上あり,試料探針間の電圧も100V 以上を印 加するような動作条件が選ばれていた^{2,3)}。つまり,探針からの電界放射電子電流を試料探針間 の距離の検出に用いていた。これに対し,Binnig 達の STM では試料と探針の間の距離が0.1nm 程度と狭く,また,試料と探針の間に加える電圧も50mV 程度の低い電圧に設定されている^{1,4,5)}。 つまり,STM では試料と探針の間に流れるトンネル電流を試料と探針の間の距離の検出に用い ている。このようにトンネル電流を用いることにより,原子の大きさ程度の表面の凹凸も検出出 来る位にまで探針が試料に近付くことが出来るようになった。しかし,それを実現するには,探 針の位置を0.001nm よりも高い精度で制御する必要がある。

ここでは、走査型トンネル顕微鏡(STM)に用いられるのと同じピエゾ電界効果を利用した アクチュエータを用いて、可変ギャップ一次元トンネルユニットを組み立て、空気中でのトンネ ル電流を計測する実験を行った結果について述べる。STM は、この2~3年の間の発達が著しく、 種々の応用の方面が開かれてきた。この実験は本学に於ける STM の建設の可能性を検討するこ とも目的のひとつにおいている。

金属の中の自由電子を真空中に取り出すのに 必要な最低のエネルギーは仕事関数とよばれ, 金属によって異なった値をもつ。詳しくみると, 金属の結晶面の方位によっても異なった値をも つがその効果は通常小さいので,ここでは簡単 のために,金属の種類により定まった固有のも のと仮定する。この様子をエネルギーバンド図 にしたものが図1である。ここではエネルギー の基準は真空中で自由電子がもつことのできる エネルギーの最低の値,すなわち真空準位に選 んである。E_tはO[°]K に置かれた金属のなかの 自由電子のもちうる最大のエネルギーであっ て,フェルミエネルギーと呼ばれるものである。 図1に於けるようにエネルギーの基準を真空準 位に選んだ場合,仕事関数¢はフェルミエネル



図-1 エネルギーバンド図

2. トンネル電流

ギー E_cと同じ値をもつ。つまり、金属のなかの自由電子からみると、仕事関数は真空中にとび だすときに越えなければならないポテンシャル障壁の高さに相当する。

量子力学によると、ポテンシャル障壁で仕切された空間に存在する自由電子の存在確率はポテ ンシャル障壁のなかでもすぐに零になるのではなく、距離に対して指数的に減少する関数に従っ て電子の存在確率が減少する。つまり、金属中の自由電子は金属の外の真空中にしみだして存在 し、表面のごく近傍にあたかも雲のように存在している。二つの金属を数 nm にまで近づけてい くと、それぞれの金属の表面近傍に存在する電子雲が互いに重なり合うようになる。このような 状態になると、二つの金属のなかの自由電子が行き来できるようになり、二つの金属が接触して いないにもかかわらず二つの金属の間に電圧を印加すると電流が観測されるようになる。このよ うな現象をトンネル効果と呼んでおり、流れる電流をトンネル電流と呼んでいる。

このような状態にまで二つの金属を近づけたときのポテンシャル障壁の様子を図2(a)に示す。 ここで、 φ₁と φ₂は二つの金属それぞれの仕事関数であり、また、エネルギーの基準は二つの金属 のフェルミエネルギー E_{f1}, E_{f2}が一致するように二つの金属の間でずらしてある。s は二つの金 属の間の距離であり、ここでは電子がトンネル効果で通り抜ける障壁の厚さに相当する。このよ うにトンネル電流が観測されるほど二つの金属が近づけられた状態では、電磁気学で取り扱われ

る鏡像力効果が無視出来なくなり,障壁を台形で示 すことはもはや出来なくなり,図中に破線で示した ような形になる。

二つの金属の間の薄いポテンシャル障壁を通り抜けて流れるトンネル電流の密度Jは量子力学の WKB近似法を用いて計算した結果によると⁶⁾.

 $J \sim CVexp(-A \, \psi^{1/2} s) \tag{1}$

で与えられる。ここで、C は電気抵抗の単位の次元 をもった定数であり、V は二つの金属間に加える電 圧であって、図 2(b)に示すように二つの金属のフェ ルミエネルギーの差として表示される。A も定数で あり、MKS 単位系を用いるとほぼ1 に近似出来る ものである。 ψ は二つの金属を隔てるポテンシャル 障壁の平均の高さであって、障壁に台形の近似が出 来るときには、

 $\psi \sim (\phi_1 + \phi_2)/2$



(2)

で与えられるものである。一般には、(1)式の成立する範囲内では鏡像力が無視出来ないので障壁 高さを(2)式で近似することには無理があるが、ここでは簡単のために、(2)式で平均の障壁高さが 与えられるものとする。実際の計測結果では後に述べるように雑音の成分が大きく、この近似の 程度が議論出来るほどのものにはなっていない。

(1)式をみると、トンネル電流は二つの金属間の距離に対して指数関数的に変化することがわかる。すなわち、印加電圧が一定のもとで、距離 s を変化させながらトンネル電流を観測すると、 電流は指数関数的に変化するので、電流の対数を距離 s に対してグラフにすると、直線の関係が えられ、その勾配から平均の障壁高さ ψ が求められることになる。

トンネルユニット

図3に、ここでの実験のために製作した試 料探針間距離の微動調整機構の構成の概略を 示す。この機構をトンネルユニットと呼んで いる。アルミニウム合金で作られたL字型 をしたものを二つ向かい合わせ、その一方に 差動マイクロメータ(フランス、ミクロコン トロール社製)を取り付けた。これは、可動 距離が0.3mm, 1回転0.05mm, 1目盛り2µ mの性能をもつもので,探針と試料の間の距 離の粗動調整に用いる。もう一方には圧電ア クチュエータ (PZT) をとりつけた。これは、 微調整に用いるもので、その移動量は1Vの 印加電圧に対して0.7nm (0.7µm/1000V) である。圧電アクチュエータの先端には薄い セラミックの板を介して,探針が取り付けら れ,一方差動マイクロメータの先端にもやは りセラミック板を介して試料が取り付けられ た。組み立てに際しては、エポキシ系の真空 用の接着剤(Torr Seal, Varian Co.)を用い ている。

このトンネルユニットを自作の防振台に取 り付けた。防振台の構成を図4に示す。子供 用の自転車のチューブ(14インチ)を人間の



図-3 トンネルユニット



図-4 防振台

404

呼吸でふくらませ(あまり圧力を高くしない), その上に40cm 角, 1 cm 厚の真鍮板を2枚乗せた。 真鍮板はおもりの役目をし, チューブはばねの役目をしているが, さらに, 基盤になる机には直 径5mm 程度の穴が5cm 程度の間隔で縦横に並んであいており, これらの穴とチューブの内側の 穴がダンパーの役目をしている。真鍮板は, そのままでは, それ自身のもつ固有振動により, 高 周波で振動するので, これを防ぐために5mm 厚のネオプレンゴムシートを表面に貼り付けてあ る。

さらに,この台の上に6層からなる積層型防振台を置き,その上にトンネルユニットを置いて いる。積層型防振台は Binnig 達の発明⁷⁾によるもので,10cm×12cm×3mm のステンレス鋼板を 6枚重ね,各板の間にはゴム製のオーリングを狭んだものである。オーリングの大きさは直径数 mm のものから10cm 程度の大きさのものまで(ゴム断面の直径では1mm から4mm のものまで) 試みてみたが,結果にあまり差はなかった。

4. 計測回路

図5に概略を示す。安定化電圧源(0~ 500V 可変) により、ピエゾドライブに直流 バイアス電圧を加え,探針の移動の中心位置 を決定する。オシレータからの交流電圧 (1Hz)をそれに重量させて、探針と試料の 間の距離を微小な振幅のもとで周期的に変化 させる。トンネル電流を流すためのバイアス 電圧は乾電池の起電圧を抵抗で分圧して, 40mVの電圧を得,これを試料と探針の間に 印加する。試料は接地電位に保たれ、トンネ ル電流の計測はこれを基準にして行う。電流 の検出には、FET 入力の高インパーダンス 型ハイブリッド集積回路(Keithley, 301型) をもちいている。これに負帰還用の抵抗(10M Ω)をつけ,電流増幅回路としている。さらに, トンネル電流は距離に対して指数関数的に変 化するので、対数増幅器を接続し、トンネル 電流が試料探針間の距離に対して直線の関係 になるような信号として検出している。スト レージオシロスコープの横軸にオシレータか



A High gain amplifier for electrometer use (Keithley 301)

- L:Log amplifier
- O:Oscillator (1Hz. 5Vpp)
- C:Capacitor $(4.7\mu m, 500V)$
- R:Registor (100 kg)
- B:Bias supply (0~100V)
- SiSample
- N:Probe tip
- P:Piezo drive
- X.Y: Input signal for the storage oscilloscope

図-5 測定回路

安 達 洋 · 加 藤 達 幸 · 鈴 木 和 郎

らの交流信号を,縦軸にトンネル電流の対数を入力し,得られた結果を写真に撮影している。つ まり,写真には横軸が試料探針間距離,縦軸がトンネル電流の対数になったグラフが記録される。

5. 測定結果

図6に測定結果の例を示した。試料は金薄板で,探針は機械的に研磨した金線である。縦軸は 電流であり,横軸は圧電アクチュエータ(PZT)に印加した電圧である。印加電圧と圧電アクチュ エータの歪み量の大きさについては、ここで計測の手段を持たないので実際に計ってはいないが、 メーカーの供給してくれたデータによると、0.7nm/Vの感度をもつ。従って,横軸の一目盛り は0.7nmに相当する。(a)は対数増幅器を用いないときの例であって、試料と探針間の距離(直 接的には圧電アクチュエータの印加電圧)に対して電流が急激に変化している。図中にたくさん のトレースが見られるのは、トンネルユニットの温度変化に伴う熱膨張のために試料探針間距離 が変化し、その結果生じるドリフトのためである。(b)は対数増幅器を用いた時の例であって、横







 (b) X:1v/div (≈7Å/div) (Applied Voltage of Piezo Drive) Y:5v/div (= 1decade / div) (0 v ≈ 5×10⁻⁹A) (Log of the Tunneling Current)

図-6(I) トンネル電流測定結果

軸に対して輝点はゆるやかに、しかも直線的に 変化している。これはトンネル電流が検出でき ている確証である。圧電アクチュエータに加え る電圧が増す方向と減る方向に電圧を変化させ たとき、つまり、試料探針間の距離が長くなる





Au - Au X:1v/div(7Å/div) Y:0.5v/div(1decade/2div) (a) 2.0 eV (b) 0.7 eV

図-6(Ⅱ) トンネル電流測定結果

406

ときと短くなるときとで、輝点の軌道が異なっているのは、圧電アクチュエータの歪み量と印加 電圧の間にヒステリシスが存在するためである。これは、圧電性物質の本来もっている性質に由 来するもので、避けがたいものである。また、ヒステリシスには本来非直線性が付随するもので あって、圧電アクチュエータのメーカーが供給してくれた0.7nm/Vという電圧機械的歪変換係 数はあくまでも平均の値と解釈すべきものであって、常に一定の値をもつものと考えることは出 来ない。

この直線の勾配から障壁の平均高さを求めて,整理したのが図7である。圧電アクチュエータ の印加電圧を増加する方向の直線の勾配から求めたものを(a)に,減少する方向のものを(b)に示し た。横軸が観測された障壁の高さ,縦軸がその障壁高さが観測された回数であり,必ずしも実験 の再現性はよくなく,このように広く分布した結果が得られた。また,(a)より(b)のほうが全般に 大きな障壁の高さを示している。これは圧電アクチュエータの歪みのヒステリシスに関係した, 電圧機械的歪変換係数の違いに起因しているものと考えている。金属の仕事関数は通常数 eV 程 度の値をもつ。図の7結果はこれよりはるかに低い値を示している。この原因はいまのところ明 らかではないが,一般に金属の表面が汚れると仕事関数が低くなる傾向にあるので,ここでもそ の効果が現れているものと推定している。Binnig 達が初期に発表した結果でも同じような傾向



図-7 大気中における平均の障壁の高さ



安達 洋 · 加藤 達 幸 · 鈴 木 和 郎

が観測されており、金属表面の汚れに原因があるものとされている⁸⁾。

図8は試料探針の間の空間に流動パラフィンを満たして実験した結果である。流動パラフィン は微小信号を切り替えるための機械的な電気接点(スイッチ)の経時変化を防ぐ目的で接点に塗 布されるもので,また,電気接点の接触不良に起因する雑音が発生したときに用いられる接点復 活剤の主成分でもある。流動パラフィンは電気絶縁性の優れた液体であるが,このような目的に 広く使われるので,電極が極めて近接した状態で計測すると,通常の広い電極間のもとで計測さ れた性質とは異なった性質を示すものと予測され,また,電気接点の経時変化の軽減の機構につ いての知見が得られるものと期待して行った実験である。結果は図8に見られるように,流動パ ラフィンを満たさないで行った図7の結果と何等有意の差が認められなかった。

6.討論

簡単な自作の防振台と自作のトンネルユニットを用いることによって、微小空隙を透過して流 れるトンネル電流の検出に成功した。トンネル電流がこのように計測されているということは、 探針と試料の間の距離が0.01nmより良い精度のもとに制御出来ていることを示している。今か ら約15年前に行われた Young 達による Topografiner¹⁾ や Ultramicrometer⁹⁾等の先駆的実験を実 用の計測器にまで発展させることが出来なかったのには、いろいろの理由が考えられているが、 その最大の理由は外部からの振動を防ぎ切れなかったためと聞いている。

試料と探針の間の距離を保つためには、図9に模式的に示したように、試料と探針の両方を機 械的に支えているC型の機構が不可欠である。このC型の機構が全体で同じ振動している場合 には、試料と探針の間の距離には全く影響を受けないが、部分によって振動の位相がずれると、 試料と探針の間の距離が変化することになり、トンネル電流は安定には観測できなくなる。つま り、このC型の機構が持つ機械的振動の共鳴周波数に注目し、その共鳴周波数が防振装置の遮

断周波数より,遙かに高くなるようにすれば外 部からの振動の影響を防ぐことができる¹⁰⁾。そ のためには、トンネルユニットはなるべく硬い 材料で、なるべく小さく作るのが良いとされて いる。

ここで用いたトンネルユニットは金属のなか では極めて柔らかいものに属するアルミニウム 合金を用いて自作した。硬い材料の切削が機械 工学を全く知らない著者達には困難であったこ とも快削アルミニウムの商品名のもとに販売さ れている柔らかいアスミニウム合金を採用させ



図-9 STM の基本構造

る大きな理由の一つではあったが、アルミニウムを切削した経験から、粘りけの強い金属である ことを知っていた。これは、振動という面から考えると減衰係数が大きいこと推測させ、また、 アルミニウムはその比重が小さいので、出来た構造の共鳴周波数もその分だけ高くなるものと推 定される。そこで、ここではトンネルユニットの構造材としてアルミニウム合金を採用した。実 験的にこのことが実証出来た訳ではないが、少なくてもトンネル電流が観測出来たという事実は、 著者達の推測が間違っていなかったものと考えている。

流動パラフィンの実験結果は著者達の当初の予測を全く裏切るものであった。少なくても電気 接点の金属表面に塗布されて,そのために電気の良導性が保たれるのであるから,極めて近い距 離に置かれた電極間でその電気伝導性を調べれば,通常の大きさの電極系で測定された結果とは 違った結果がでて然るべきものと考えていたが,結果は空気中に置かれた裸の金属の間で流れる トンネル電流と全く同じ結果を与えた。このことが電気接点に流動パラフィンを塗布出来る理由 と考えることもできるが,逆に全く変化を与えないものがなぜ接点の動作の安定性に寄与するの かという疑問を提起している。

本研究は学内教育特別研究費の補助の下に行われたものであり、ここに謝意を表したい。

文 献

- 1) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel: Phys. Rev. Lett. 49 (1982) p. 57
- 2) R. Young, J. Ward and R. Scire: Rev. Sci. Instrum. 43 (1972) p. 999
- 3) R. Young, J. Ward and F. Scire: Phy. Rev. Lett. 27 (1971) p. 922
- 4) G. Binnig and H. Rohrer: Physica 127B (1984) p. 37
- 5) G. Binnig and H. Rohrer: Surface Science 126 (1983) p. 236
- 6) J. G. Simmons: J. Appl. Phys. 34 (1963) p. 1793
- 7) Ch. Gerber, G. Binnig, H. Fuchs, O. Marti and H. Rohrer: Rev. Sci. Instrum. 57 (1986) p. 221
- 8) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel: Physica 109 & 110B (1982) p. 2075: Appl. Phys. Lett. 40 (1982) p. 178
- 9) R. D. Young: Rev Sci. Instrum. 37 (1966) p. 275
- 10) H. Adachi: Proc. 6th. Sensor Symposium (1986) p. 137 (電気学会 主催)