独立駆動二探針 STM システムの構築*

高見和宏** 赤井 恵*** 齋藤 彰† 青野正和†† 桑原裕司†††

Construction of Independently Driven Double-Tip Scanning Tunneling Microscope

Kazuhiro TAKAMI, Megumi AKAI-KASAYA, Akira SAITO, Masakazu AONO and Yuji KUWAHARA

We construct an independently driven double-tip scanning tunneling microscope (STM) for evaluating electrical conduction within the micrometer scale under ambient condition. Each STM unit has an atomic resolution and enables the tip to approach an intended position within 10 nm² on the surface with three coarse driving stages and a piezoelectric devices which has a maximum scan area of 15 μm. The current flow between the two tips through the material can be detected in the range from 0.1 pA to 100 nA. The conductivity measurement of the poly(3-octylthiophene) thin films was demonstrated using this system.

Key words: Scanning Tunneling Microscope (STM), independently driven double-tip STM, conductivity, micrometer scale, electric conduction

1. 緒 言

近年、半導体微細化の急速な発展に伴い、ナノスケールデバイスが注目されている。ナノスケールデバイス実用化のためには、ナノメートルスケールの構造物(ナノ構造)の構築と同時に、個々のナノ構造に対して、物理的・化学的特性を測定する新しい方法の開発が必要不可欠である。

走査型プローブ顕微鏡(SPM)技術を使ったナノ構造の導電性評価では、探針と試料表面の配置から、基板に垂直に配置したナノ構造の導電性が評価されてきた¹⁾²⁾。しかしこの方法では、基板に平行な構造の特性評価は不可能である。他にナノ構造の電気的性質を評価する方法としてはリソグラフィーを用いて作製したギャップ電極を使う方法がある³⁾⁴⁾。しかしこの方法は、電極間距離を変えることが不可能である。これを可能にするために金属コーティングされた原子間力顕微鏡(AFM)用のカンチレバーを一つの電極として使用している報告もあるが⁵⁾、もう一方の電極をあらかじめもしくは後から作製する必要がある、固体表面上に任意に配置されたナノ構造の電気伝導特性を直接評価することができない。

上記のような欠点を克服した方法として、多探針 SPM 法がある。この方法は、各々の探針を材料の意図した位置に容易にアプローチできる利点を持っている。現在までに、いくつかのグループ、特に国内のグループを中心に多探針 SPM が作製されている^{6)~12)}。Nakayama らは、二探針 STM によって、シリコン表面上のエルビウムシリサイド(ErSi₂)ナノワイヤーの導電性評価に成功した⁷⁾。また Hasegawa らは、四探針 STM を構築し、シリコン表面やシリコン表面上の金、銀、インジウムの電気伝導特性^{8)~11)}およびカーボンナノチューブの電気伝導特性評価¹²⁾

に成功している。これらの多探針 STM システムは、超高真空中で稼動する。一方で実用化を考えると、動作雰囲気中で評価を行うことは極めて重要である。このような観点から、我々は主に大気圧で動作する独立駆動二探針 STM システムの開発を行い、マイクロメートルスケールでの固体表面上のナノ構造の電気伝導特性評価を目的とした。このシステムは、シリコンデバイス等の実用表面の評価にも用いると共に、生体試料など将来的な応用も可能であると考えられる。

2. 独立駆動二探針 STM システムの構築

2.1 ピエゾ素子の設計

本システムでは、その測定対象のサイズが極微サイズであるという要請から、両探針間の距離をできる限り接近できるシステム構成が必要である。CCD カメラや光学顕微鏡で観察しながら両探針を近づけた場合は、探針間距離 1 μm が限界である。それ以下の探針間の接近は、STM の機能を用いて 2 本の探針をそれぞれ走査しながら位置を確認しつつ行わなければならない。このような要請から、迅速にかつ正確に 2 つの探針を接近させる必要があるため、走査範囲の広いピエゾ素子を使用する。今回は、ピエゾ素子を新規に設計した。ピエゾ素子には、株式会社富士セラミックス社製の中空円筒型圧電素子を用いた。

ピエゾ素子の可動範囲は変位計算式によりその変位量を計算することができる。中空円筒型圧電素子における xy 軸と z 軸の変位計算式を以下に示す。これらの計算式から求められる値は片側変位量であるので、実際の可動範囲に換算するときには 2 倍する必要がある。

$$xy \text{ 軸 (片側変位量)} = \frac{1.5 \times d_{31} \times (xy \text{ 電極長})^2 \times \text{電圧}}{\text{平均直径} \times \text{肉厚}}$$

$$\text{平均直径} = \frac{(\text{内径} + \text{外径})}{2}$$

$$z \text{ 軸 (片側変位量)} = \frac{1.25 \times d_{31} \times z \text{ 電極長} \times \text{電圧}}{\text{肉厚}}$$

*原稿受付 平成 17 年 10 月 5 日

**学生会員 大阪大学大学院 (大阪府吹田市山田丘 2-1)

***科学技術振興機構 さきがけ(兼、大阪大学大学院)

†大阪大学大学院(兼、理化学研究所播磨研究所; 兵庫県佐用郡三日市町光都 1-1-1, 科学技術振興機構 ICORP ナノ量子導体アレープロジェクト; 埼玉県川口市本町 4-1-8)

††ナノマテリアル研究所 (茨城県つくば市並木 1-1, 兼、科学技術振興機構 ICORP ナノ量子導体アレープロジェクト)

†††正 会 員 大阪大学大学院(兼、理化学研究所播磨研究所, 科学技術振興機構 ICORP ナノ量子導体アレープロジェクト)

d_{31} は等価圧電定数であり、電界を与えたときに生ずる圧電素子の歪率で定義される。この定数は、使用するセラミックスの種類によって異なり、我々が使用したセラミックス(C-82)の等価圧電定数は $260 \times 10^{-12} \text{ m/V}$ であった。

ピエゾ素子の外径は 4.6 mm とした。可動範囲を大きくするためには肉厚が薄い方がよい。肉厚は加工限界である 0.5 mm を採用した。したがって、ピエゾ素子の内径は 3.6 mm となる。作製したピエゾ素子の耐電圧は 175 V である。

次にピエゾ素子の下端の可動範囲を、ピエゾ素子に接着する電極の長さの関数として計算する。印加電圧を 100 V として計算を行った。この値は、STM コントローラで使用できる最大印加可能電圧の約 60% である。またここで用いるピエゾ素子は、 z 軸方向に移動させるための電極と x および y 軸方向に移動させるための電極を同じに設定しているため、 z 電極長と xy 電極長は同じ値を用いて計算した。作製するピエゾ素子の xy 軸の可動範囲として、最大 $15 \mu\text{m} \times 15 \mu\text{m}$ が必要なため、計算による見積もりから xy 電極長は 21 mm に決定した。この時、 z 方向の可動距離は $\pm 1.365 \mu\text{m}$ と見積もられる。

2.2 探針角度の設計

図1にピエゾ素子及び探針の模式図を示す。ピエゾ素子には、探針を固定するための探針ホルダーを取り付けており、探針ホルダーには探針を固定するためのチューブが取り付けられている。探針を差し込んだときに、探針が曲がって固定されるよう、チューブの途中に角度をつけた。また、図に示したように、両探針ホルダー間の最短距離は 3 mm となるよう設計した。これは、両探針を近づける際に使用する CCD カメラの観察範囲がおおよそ 3 mm であることや、探針を交換する際の利便性を考えて決定している。

ピエゾ素子の中心軸と探針を鉛直方向に沿って一直線に配置すると、2本の探針を接近させる際にピエゾ素子同士が干渉するため、両探針の先端を接近させるためには、ピエゾ素子や探針に角度を持たせる必要がある。本設計では図に示す α , β , γ の3箇所に角度を持たせた。 α はピエゾ素子と鉛直方向がなす角度、 β はチューブ固定のため探針ホルダーに作製する穴とピエゾ素子がなす角度、 γ は探針固定チューブと探針ホルダーに作製する穴がなす角度である。水平面に置いた試料では、探針は試料表面垂直に対して角度 θ ($\theta = \alpha + \beta + \gamma$) だけ傾くことになる。探針ホルダーの長さを h 、探針の長さを L 、探針が走査可能な x 軸方向の距離を X 、として、 α , β , γ , h の値を変えたときの L と X の値を計算し、最適値を求める。この時、探針の長さ L 、ピエゾ素子の鉛直方向に対する角度 α と試料表面垂直に対する探針の角度 θ に注意した。これは、探針の長さが長すぎると STM 像取得中

Fig.1 Schematic image around tip and piezoelectric devices

Fig.2 Two types of scan area in x - z plane differed from tip angle against a sample surface normal

に振動によるノイズの影響が出やすく、また、ピエゾ素子の鉛直方向に対する角度や試料表面垂直と探針の角度が大きくなると、取得した STM 像に歪が出るなどの影響がでるためである。

まず、探針の長さ L は幾何学的な位置関係から次の式で表される。

$$L = \frac{1.5 + (2.3 - h \tan \beta) \times \cos \alpha}{\sin(\alpha + \beta + \gamma)}$$

また、ピエゾ素子の最大可動範囲は x , y 方向で 16780 nm , z 方向で 2730 nm であるから、探針の x 軸方向における最大可動距離 m は次の式で表される。

$$m = \sqrt{(25 + h + L \cos(\beta + \gamma))^2 + (L \sin(\beta + \gamma) + h \tan \beta)^2} \times \frac{16780}{25}$$

探針は試料表面垂直に対して角度 θ だけ傾いているので、実際に STM 探針が x - z 平面内で走査可能な範囲は図2に斜線で示した領域となる。

x - z 平面内の走査範囲は、図2に示すように、 θ が大きくなるとしたがって、その範囲が限定される。 x 軸方向の走査可能距離 X は次の式で表される。

$$\text{図 2(a) のとき } X = \frac{m - 500 \sin \theta}{\cos \theta}$$

$$\text{図 2(b) のとき } X = \frac{2730 - 500 \cos \theta}{\sin \theta}$$

以上を元にして h , α , β , γ の値を変えたときの L , X を計算した。探針の z 軸方向の可動距離 500 nm を確保したいという要請から、今回は $h = 3 \text{ mm}$, $\alpha = 5^\circ$, $\beta = 20^\circ$, $\gamma = 20^\circ$ という値を採用した。このときの探針の長さ L は 3.21 mm , x 軸方向の走査範囲 X は図2(a)の場合に対応しており、約 $3.4 \mu\text{m}$ 四方となる。

2.3 探針・試料周辺の設計

STM 探針の位置制御は、ピエゾ素子のほかに粗動機構を用いて行う。粗動機構は、探針を広い範囲に移動できるように総移動量が大きく、かつ、探針同士の接触や探針と被測定物の接触などを精密に制御できるように 1 ステップの移動量が小さいものが必要である。そこで今回は、オミクロン社製のマイクロスライドを用いた。使用したマイクロスライドは、総移動量が $\pm 5 \text{ mm}$, 1 ステップの移動量が $40 \sim 400 \text{ nm}$ であり、位置再現性は $\pm 5\%$ である。このマイクロスライドを x , y , z それぞれの軸に配置することによって、探針は試料表面上の 10 mm^2 の範囲を移動することが可能となる。

Fig.3 Photograph of the laboratory-built DT-STM around tip and sample

Fig.4 Photograph of the DT-STM

その他、ピエゾ素子と粗動機構の接続，粗動機構同士の接続に必要な部品を設計した．加工しやすいように，絶縁体にはゲルリンを，その他はステンレス鋼(SUS304)を用いた．これらの部品を組み合わせで作製した独立駆動二探針STMシステムを図3に示す．

2.4 本体周辺の設計

本体を配置する台座には，除振を兼ねてステンレス製のリングとゴムを交互に5層配置した．また，プリアンプを配置するため，支柱を4本立て，その上にステンレス鋼板をのせた簡易な台も設置した．台表面にはプリアンプと台の絶縁をとるために，絶縁体として優れているプラスチックフィルムを貼った．

以上，本体周りの様子を図4に示す．

2.5 探針バイアスプリアンプの作製

独立駆動二探針STMシステムを用いて固体表面上に配置された微細構造物の抵抗測定は，2本の探針間に電位差を与え，そのとき両探針間に流れる電流を測定することにより行う．市販のSTM装置は，通常試料側に電位を与えるようになっており，探針に電位を与えることができない設定となっている．今回，探針に電位を与えることが可能な探針バイアスプリアンプを新規に作製した．

この作製は，アルバック・ファイ株式会社に特注した．ゲインは 10^8 ，帯域幅は50 kHz，探針に印加可能な電圧の範囲は ± 3 Vである．

この探針バイアスプリアンプを片方の探針に接続し，他方の探針には，市販のプリアンプ(IPV-300, RHK Technology Inc., 10^9 ゲイン)を接続した．2つのプリアンプをあわせて使用することにより，両探針間に流れる0.1 pAまでの電流を計測することができる．電流の計測はオシロスコープ(LT-224, Iwatsu-LeCroy Co. Ltd.)で行った．

2.6 CCD カメラの選定

探針と試料との機械的接触の様子や探針間距離を，空間分解能が1 μ mで観察・評価できるCCDカメラを選定した．このCCD

カメラは，レンズシステム(VZM1000 video lens, Edmond Optics Japan Co., Ltd.)とCCDユニット(XC-70, Sony Co., Ltd.)で成り立っている．分解能が高くなると焦点距離が短くなる，すなわち，CCDカメラと試料の距離が近くなるので，試料周辺の装置とCCDカメラの干渉が問題になる．今回選定したCCDカメラは焦点距離が35 mmであり，本システムに組み込んでも操作上，問題ないことを確認した．

2.7 除振および防音

本システムでは，微少な電流計測や原子分解能を持つSTM像の取得を行うため，特に外部からの振動や騒音に注意を払わなくてはならない．そこで，床からの振動，周辺の騒音による影響を減少させるために，除振台及び防音ボックスを設置した．

除振台には，圧縮空気を入れ天板を浮かせて除振を行うパッシブ除振台と，さらにコンピュータ制御によって除振台上で生じた直接振動を能動的に抑制するアクティブ除振台がある．今回は，特許機器株式会社製のアクティブ除振台 α AD-77QB1を採用した．天板の大きさは75 cm $\times$ 75 cmと小型であり，除振台下に車輪を設置することで移動も可能となっている．

次に，採用した防音パネルの仕様を表1に示す．この防音パネルは日本サウンドテクノ株式会社製のものである．このパネルは，表面材にSUS304の鋼板を使用し，防音と同時に電磁波の除去も行う．パネルは天井部1枚および周囲4枚の計5枚用意し，除振台上に枠を作製して，そこに各パネルをはめ込む形にした．このことによって，試料交換などの際にパネルの一部を外して容易に中で作業が可能となる．

この防音ボックスを使用した時の遮音性能測定の結果を表2に示す．遮音性能測定は，STM観察時と同様にアクティブ除振台を動作した状態で，完全に閉じた防音ボックスの内と外で行った．また音圧評価には，人間の五感に即した補正を行わないF特性を利用した．この結果から，防音ボックス内では，500 Hzから1000 Hzで最大30 dB近くの音圧レベル低下が見られることが分かる．図5に除振台および防音ボックスの全体像を示す．

2.8 制御システムおよび配線

本システムを構成する各STMユニットを制御するためには，制御用電圧信号を発生するハードウェアとそれを制御するコンピュータ制御装置が必要である．本システムでは，ハードウェアにSPM100コントローラ(RHK Technology Inc.)を，コンピュータ制御装置は市販のコンピュータにSPM32ソフトウェア(RHK Technology Inc.)を搭載したものを採用した．このハードウェアおよびコンピュータ制御装置は，STMだけでなく近接場光学顕微

Table 1 Specification of soundproof box

Item	Specification
Panel thickness (mm)	45
Surface material	SUS304
Component material	Glass wool
Surface material (back)	Aluminum sintering material
Soundproof ability (dB)	< 30 (at 500 Hz)

Table 2 An ability test result of soundproof box

Frequency (Hz)	63	125	250	500	1000	2000	4000
Outside of the box (dB)	43.3	43.1	47.0	46.9	47.2	34.7	29.1
Inside of the box (dB)	42.8	30.0	29.4	20.7	16.6	19.5	20.5
Transmission Loss (dB)	0.5	13.1	17.6	26.2	30.6	15.2	8.6

Fig.5 Photograph of soundproof box and active dumper

Fig.6 Photograph of the total DT-STM system

鏡や原子間力顕微鏡など様々な装置を接続し制御することも可能である。特に自作のシステムを容易に組み込めるように、回路図や制御フローなどが公開されている。制御システムを含めた全体像を図6に示す。

3. 独立駆動二探針 STM システムの性能評価

3.1 STM 観察

作製した独立駆動二探針STMシステムの性能を評価するために、両探針で独立にSTM観察を行った。高配向熱分解グラファイト(Highly Oriented Pyrolytic Graphite: HOPG)を試料に用い、探針には白金イリジウム(Pt/Ir(80/20))を用いた。プリアンプは前述した市販のプリアンプを用い、観察は定電流モードで行った。図7にその典型的なSTM像を示す。

約2.5Åの間隔で輝点が規則正しく配列しており、HOPG表面のSTM像において、原子分解能像が得られていることが分かる。このようにして、各STMユニットで原子分解能の観察が可能であることを確認した。

次に、片方の探針を試料表面に接触させ、もう一方の探針で接触させた探針先端のSTM像観察を行った。試料には先ほどと同じHOPGを使用し、探針には先端曲率半径の小さい白金イリジウム(Pt/Ir(80/20))、先端曲率半径500Å以下、Materials Analytical Services Co., Ltd.)を用いた。実験方法は次の通りである。まず、CCDカメラで観察しながら、粗動機構によって一方の探針を試料表面に接触させ、試料に1Vの電圧をかける。次に、試料表面に接触させた探針との距離が1μm程度になるまでもう一方の探針を粗動機構によって近づけた。その後、ピエゾ素子を用い

Fig.7 Typical atomic resolution image of HOPG surface (3 nm×3 nm, $V_s = -1.2$ V, $I_t = 0.7$ nA).

Fig.8 STM image of one tip obtained by the other tip

てSTMスキャンを行いながら、試料表面に接触させている探針を探した。図8に試料表面に接触させた探針をもう一方の探針で観察した時のSTM像を示す。

像の左側に見られる白い部分が試料に接触させた探針の先端である。このSTM像では探針の先端が明るく観察されており、HOPG表面は黒い平坦な平面として画像に表れている。これは、観察されている探針の表面が試料表面と比べて500~800nm高く、原子レベルで平坦なHOPG基板の凹凸が観察されないためである。

3.2 有機薄膜の電気伝導特性評価

構築した独立駆動二探針STMシステムを用いて、有機薄膜の電気伝導特性評価を行った。ここでは、ポリ(3-オクチルチオフェン)膜の電気伝導特性評価の結果を示す¹³⁾¹⁴⁾。

ポリ(3-オクチルチオフェン)分子(Regiorandom Poly(3-octylthiophene), Polysciences Inc.)のクロロホルム溶液をへきかいしたマイカ基板上に滴下し(0.05 ml)、スピコート法によって2000 rpmで薄膜を作製した。作製した薄膜の膜厚はAFMで評価し、200 nmと見積もった。

作製した薄膜の電気伝導特性評価は、以下の手順で行った。まず、CCDカメラで観察しながら2本の探針を1本ずつ薄膜表面に接触させる。探針を接触させた後、探針間に電圧を印加し、両探針間に流れる電流を測定した。探針間距離をマイクロメートルオーダーで制御しつつ、両探針間に流れる電流値の測定を行い、両探針間の抵抗値と探針間距離の関係を求めた。その結果を図9に示す。

図9において、四角および丸点は、それぞれ別に作製した膜で行った結果を示しており、対応する曲線は、それぞれの実験結果に対して対数関係を仮定して非線形最小二乗法でフィッティングを行ったものである。探針間の抵抗値が探針間距離に対して対数関係を仮定したフィッティングによく合っていることが分かる。この結果は、被測定物の電気伝導が点電極を用いた際の二次元電気伝導であることを示しており、ポリ(3-オクチルチオフェン)膜の独立駆動二探針STMシステムによる電気伝導特性は、典型的な二次元電気伝導である。

Fig.9 Variation of the resistance between two tips for poly(3-octylthiophene) thin films as a function of tip-tip distance. Two data sets were taken from different P3OT thin films with the same film thickness.

また、実験結果に対するフィッティングから導電率を求めると¹⁴⁾、 $(0.6\sim1.4)\times10^{-7}$ S/cm となった。この値は、これまでに報告されているポリ(3-オクチルチオフェン)の導電率¹⁵⁾とよく一致しており、本システムがマイクロメートルオーダーの有機薄膜の電気伝導特性評価に有効であることを示している。

4. 結 言

本研究では、ナノメートルスケールでの電気伝導特性評価を目的として、独立駆動二探針 STM システムを構築した。システムの構築では、以下のような特長を持たせた。

- (1) ピエゾ素子の可動距離を 10 μm とし、2 本の探針が互いの探針を容易に見つけることができるようにした。
- (2) ナノメートルスケールまで接近させる際に互いに干渉しないように、ピエゾ素子と探針ホルダーに適当な傾きを持たせた。また、作製した独立駆動二探針 STM システムの性能を評価した。
- (3) HOPG 表面の観察を行い、システムを構成する各 STM において原子分解能像の取得が可能であることを示した。
- (4) 片方の探針を HOPG 表面に接触させ、もう片方の探針で固定した探針先端の STM 像を観察することに成功した。
- (5) ポリ(3-オクチルチオフェン)薄膜の電気伝導特性を評価し、2 次

元電気伝導を確認した。また、その導電率は $(0.6\sim1.4)\times10^{-7}$ S/cm となり、過去の報告とよく一致した。

謝 辞

本研究は、文部科学省 科学研究費補助金(基盤研究 A) (#11305007)より援助を受けています。また、本研究は、科学技術振興機構 ICORP ナノ量子導体アレープロジェクトより援助を受けています。

参 考 文 献

- 1) L. A. Bumm, J. J. Arnold, M. T. Cygan, T. D. Dunbar, T. P. Burgin, L. Jones II, D. L. Allara, J. M. Tour, P. S. Weiss: *Science*, **271**, (1996) 1705.
- 2) H. Sakaguchi, A. Hirai, F. Iwata, A. Sasaki, T. Nagamura, E. Kawata, S. Nakabayashi: *Appl. Phys. Lett.*, **79** (2001) 3708.
- 3) M. A. Reed, C. Zhou, C. J. Muller, T. P. Burgin, J. M. Tour: *Science*, **278**, (1998) 252.
- 4) S. J. Tans, M. H. Devoret, H. Dai, A. Thess, R. E. Smalley, L. J. Geerlings, C. Dekker: *Nature*, **386** (1997) 474.
- 5) Y. Otsuka, T. Naitoh, T. Matsumoto, T. Kawai: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** (2002) L742.
- 6) 青野正和, 美春生, 中山知信, 奥田太一, 喬山, 櫻井亮, カーステンティアストループ, 吳章華: *応用物理*, **67** (1998) 1361.
- 7) T. Nakayama, O. Kubo, Y. Shingaya, S.-P. Kim, H. Tanaka, T. Okuda, C.-S. Jiang, M. Aono: submitted to *Phys. Rev. Lett.*
- 8) S. Hasegawa, I. Shiraki, F. Tanabe, R. Hobara: *Curr. Appl. Phys.* **2** (2002) 465.
- 9) I. Shiraki, F. Tanabe, R. Hobara, T. Nagao, S. Hasegawa: *Surf. Sci.*, **493** (2001) 633.
- 10) T. Kanagawa, R. Hobara, I. Matsuda, T. Tanikawa, A. Natori, S. Hasegawa: *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003) 036805.
- 11) H. Okino, R. Hobara, I. Matsuda, T. Kanagawa, S. Hasegawa, J. Okabayashi, S. Toyoda, M. Oshima, K. Ono: *Phys. Rev. B*, **70** (2004) 113404.
- 12) R. Hobara, S. Yoshimoto, T. Ikuno, M. Katayama, N. Yamauchi, W. Wongwiriyan, S. Honda, I. Matsuda, S. Hasegawa, K. Oura: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **43** (2004) L1081.
- 13) K. Takami, J. Mizuno, M. Akai-Kasaya, Y. Kuwahara, M. Aono: *J. Phys. Chem. B*, **108** (2004) 16353.
- 14) K. Takami, M. Akai-Kasaya, A. Saito, M. Aono, Y. Kuwahara: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44** (2005) L120.
- 15) K. Yoshino, D. H. Park, B. K. Park, M. Fujii, R. Sugimoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27** (1988) L1410.