

// 最新技術情報 //

## 4 探針 STM 装置

保原 麗, 長谷川 修司  
東大理学部

〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

ナノスケールでの電気伝導測定の手法の一つに、多探針 SPM を用いた手法がある。空間分解能や測定精度、マニピュレーションへの応用などで利点があるが、構造が複雑になり、開発が難しい。本稿では、多探針 STM を電気伝導測定に用いる際の、技術的困難さとその解決法を述べ、我々の作成した独立駆動型低温 4 探針 STM 装置の基本的性能を紹介する。

Key words: STM, multi-probe, electronic conductance measurement

### 1. はじめに

近年のナノテクノロジーの発展に伴い、ナノサイズでの物性測定が重要となっている。なかでも電気伝導度は基礎的で応用上も重要な物性であるため、その測定のための研究が盛んである。誘導電流によって測るもの[1]、マイクロ波を用いるもの[2]、小さい電極 (microelectrode) を直接コンタクトさせるものなど[3-5]、さまざまな手法が開発されている。

なかでも SPM のプローブを電極として用いる手法は、一つ一つのナノ構造体や薄膜の電気伝導をその場で直接測定できるという優れた特徴をもつ[6-13, 15-17]。Bachtold らの 1 探針を使った測定[6]、久保らの 2 探針 STM を用いた測定[11]、白木らの 4 探針 STM を用いた 4 探針測定[12, 14]など、その空間分解能と自由なプローブ配置を生かした測定が為されている。近年我々は低温型 4 探針 STM を開発し、室温および低温における 2 次元伝導体の異方性測定を行った[15-17]。

電気伝導測定においては、電気的な接触が弱くなればなるほど、対象の大きさが小さくなればなるほど、接触点の影響が大きくなり、測定が困難になる。この接触の影響を減らすためには、一般に 4 端子法が用いられる。一方、多探針 SPM は構造が複雑であるため、探針数を増やすことは容易ではない。そのため 4 探針以上の多探針 SPM をもちいた電気伝導測定は未だ一般的でない。

我々は 4 端子測定を行うことを前提とした、各種多探針 STM の開発を行ってきた。本稿では我々の開発した低温型 4 探針 STM の技術上の工夫を述べ、その性能を紹介する。

### 2. 装置の概要

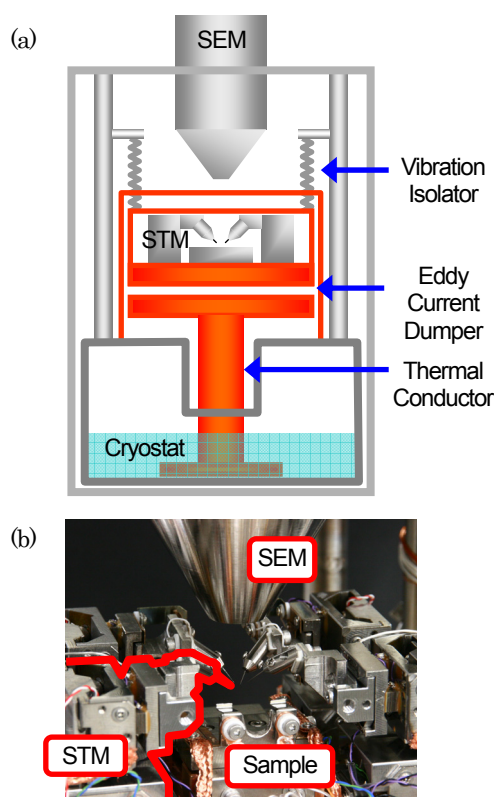


図 1 (a)独立駆動型低温 4 探針 STM の概要図。SEM, 4 つの STM, 除震機構, Cryostat から成る。(b)STM ステージ周辺の写真。

#### 2.1. 仕様

STM の探針を用いてナノ構造体や薄膜、表面超構造を自由に測定するためには、探針の位置を制御し、対象と電気的接触をとる必要がある。そのため、(1)mm から nm オーダーで独立に位置制御可能な 4 つの探針が必要であり、(2)測定対象および探針の位置関係を観測できる顕微鏡が必要である。探針の配置は mm から nm の範囲で行うことを想定しているため、

顕微鏡として SEM を採用した。上記 2 点に加え、相転移や量子効果を測定するために(3)液体ヘリウムを寒剤とした低温での測定、表面を清浄な状態で測定するため(4)超高真空下での測定を装置の要件とし、開発を行った。開発した STM の概要および写真を図 1 に示す。

## 2.2. 多探針 STM

当然ながら、本装置でもっとも困難なのは STM 部である。mm から nm の範囲で電気伝導測定を行うため、各探針の移動範囲は数 mm 必要であり、STM の際はサブオングストロームの精度で探針をスキャンできねばならない。また、電気伝導測定を行う際には探針や試料を頻繁に変えるため、探針と試料は自由に交換できなければならない。さらにそういった機能をもつ STM を 4 つ、SEM 下に試料と共に並べる必要がある。

これは非常に困難な要求であり、十分満足いく能力のあるものを作るのは困難であるが、我々は以下のようなデザインを採用し、実用に耐える装置を開発した。

探針の駆動機構には Shear Piezo Stack を用いた Stick-Slip 機構を X, Y, Z の 3 軸に用いることにした。Slip-Stick 機構により nm~mm までの駆動が可能で、Non-Slip で使うことにより STM も可能となる。また、STM の際のフィードバック用に Slip 無しのピエゾも設けることにした。

各探針は片持ち梁(カンチレバー)の要領で四方から試料に向けることとした。片持ち梁は振動に弱いという欠点があるが、これにより試料上方が空いため、SEM を設置することができる。

片持ち梁であり、各 STM に 3 軸の駆動機構がついていて複雑である。さらに対称性が低いため、非常に振動に弱い STM となる。また、温度変化に対するドリフトも大きい。現在のところ画期的解決策はなく、多探針 STM ではこれをいかに克服するかが課題である。

## 2.3. 振動対策

SEM と試料の間の振動を防ぐために、SEM と試料の間を物理的に硬く接続する必要がある。SEM は装置外部に固定されるため、これにより装置外部の振動が試料に伝わることになるが、SEM と試料は同時に揺れるために問題にはならない。

SPM も同様で、プローブと試料との間の振動を防ぐ必要がある。SPM と試料を真空内で浮かし、物理

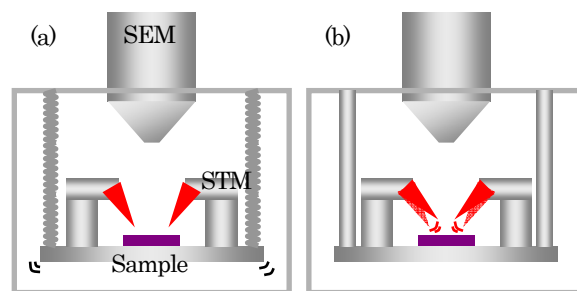


図 2 (a) 試料を除震した場合。試料が揺れるため SEM の分解能が悪いが、STM が測定できる。(b) 試料を固定した場合。SEM は精度良く観測できるが、探針が揺れるため STM が測定できない。

的に非接続とすることで外部からの振動を防ぐ除震機構と、プローブを小さく硬く作ることでプローブと試料の間の振動を減らす方法の、2 種の方法が広く用いられている。SEM と SPM を組み合わせた装置では、SEM の分解能が下がるために除震機構が使えない。そのため、小さく硬い SPM を作るのがセオリーである。1 探針 SPM であれば SEM に比べ十分に小さく硬く作れるため、問題にはならない。

ところが多探針 SPM では事情が変わる。前述のように、多探針 SPM は 1 探針 SPM とくらべて遥かに振動に弱い構造とならざるをえない。除震機構なしでの SPM 測定は困難である(図 2)。

冷却機構に関しても同様である。試料を冷却するためには試料と冷却機構の間を熱伝導よく接続する必要があるが、これは物理的に硬く接続することになる。冷却機構は中の寒剤が振動を生むこともあり、SPM 時は物理的に非接続にすることが望ましい。

このように、SEM や冷却機構と多探針 SPM は相矛盾する構造を要求する。我々は、クライオスタットの上部に、ばね除震機構を持った STM ステージを設置し、SEM 観察時や冷却時にはばね除震機構を無効にすることで、SEM の分解能と熱伝導を確保することとした。銅のロッドをクライオスタットの中央に配置し、寒剤との熱接触を確保している。これらの工夫により、温度範囲は室温から 7K、SEM の分解能は 20nm、STM は原子分解能のある装置を開発することに成功した。

## 2.4. 探針

電気伝導測定を行う上で、最小プローブ間隔はどれだけ小さい物を測れるかという性能の目安になる。本装置のような SPM 探針を用いた電気伝導測定では、探針が接触するまで測定可能であるため、最小プロー

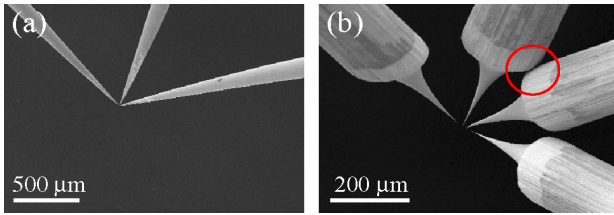


図3 (a) 動的研磨法により作成した多探針STM用の長い探針。探針の先端まで綺麗に集合している。(b) 通常の静的研磨法により作成した短いSTM探針。赤い丸の部分で探針同士が接触している。

ブ間隔は探針の形状で決定される。我々は多探針STMでの電気伝導測定に適した探針の製作法も考案した[18]。

1 探針のSTMでよく用いられるタングステンなどによる電解研磨の方法は、探針と電解液の境界付近で研磨が進むため、研磨面が窪んだ円錐状になり、探針の長さが短くなる(図3(b))。そのため、探針の先端を1箇所に集合させる際に、探針の太さが障害となる。

我々は研磨時に探針と液面を動的に動かすことにより、探針の長さを自由に制御できる、動的研磨法を開発した。これにより、鋭く長い探針を作ることができ、探針同士の干渉を最小に抑えられる(図3(a))。

探針と試料の為す角は約35.3度とした。これは、探針を一点に集めた際、探針と探針、探針と試料の成す角の最小値が、最も大きくなる角度である。各探針の曲率半径がすべて同じだった場合、探針間距離が最小になる値であり、探針の曲率が異なっても概ね良く集合する角度である。

## 2.5. 測定装置・手法

STM探針を用いて電気伝導測定を行うためには、各探針を協調して電圧・電流プローブとして動作させる必要がある。多探針STMでは探針の安定性が低く、温度ドリフトも大きいため、すばやく測定する必要がある。各探針の距離を測定したり、互いにぶつからないように制御するなど、1探針ではあり得ない作業が多々必要となる。

こういった多探針STM固有の測定を円滑に行うため、多探針STM用の統合型コントローラーの開発も行った。このコントローラーは4つのSTM/STSを同時・独立に制御可能だけでなく、探針の任意の組み合わせによる電気伝導測定、SEMを用いたプローブの自動配置などが可能であり、多探針STMに必要な機能が、1台のコントローラーで制御可能となっている(図4)。

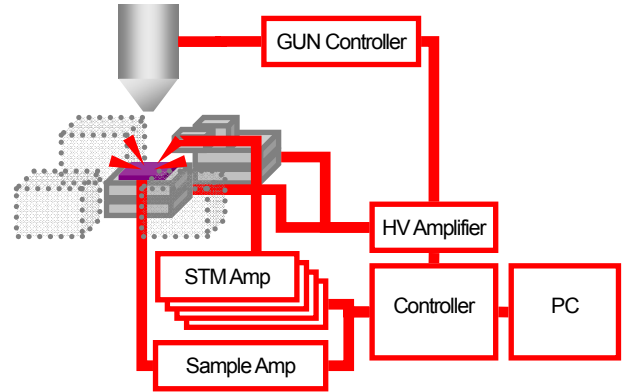


図4 測定系の概略図。各探針と試料にモード切替可能な、多探針STM専用ヘッドアンプが付いている。探針・試料および電子銃の位置制御、各探針のモード制御、すべてコントローラーを通してPCで制御される。

コントローラーは探針および試料用の5つの特殊ブレアンプ、制御電子回路、PCなどからなり、各探針の測定モード、位置、印加電圧などをPC上から自由に制御できる。

たとえば、4端子電気伝導測定を行う場合、我々は以下のような手順で電気伝導測定を行っている。

- (i) SEM下で4つの探針を直線・正方など、適切な配置に並べる。
- (ii) 各探針をトンネル電流測定モードとし、トンネルコンタクトを形成するまで、アプローチさせる。
- (iii) フィードバック回路を停止し、各探針の高さを固定する。
- (iv) 探針の電位を下げた後、各探針のZピエゾを一定量伸ばし、探針を試料に接触させる。
- (v) 二つの針を電圧測定モード、他の二つを電圧出力(電流測定)モードにする。
- (vi) 一つの探針の電圧をスイープし、流れる電流と各探針の電位を測定する。
- (vii) 各探針のZピエゾを縮め、針をリリースする。
- (viii) 探針にバイアスをかけ、フィードバックを再開する。

(ii)~(viii)の一連の測定は1ms~60s程度の時間で行うことができる。寒剤を用いて冷却しながら、もしくは過熱しながら行うことで、電気伝導度の温度依存性も測定することが可能である。

我々の開発したコントローラーではSEMのコントローラーも統合されており、電子線走査や2次電子検出を行うことができる。電子線走査とともに2次電子、各探針・試料の吸収電流を測定することで、各シグナ

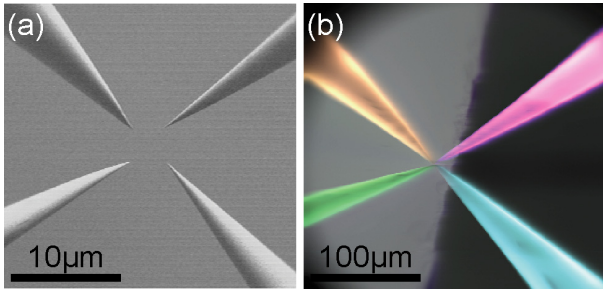


図 5 (a) 探針を  $5\mu\text{m}$  の正方形に自動整列した際の SEM 像(2次電子像) 探針先端が正方形に並んでいる。(b) 各探針に流れる吸収電流および 2 次電子を色を変えてプロットした像。各探針の電流を個別に測定できているのがわかる。

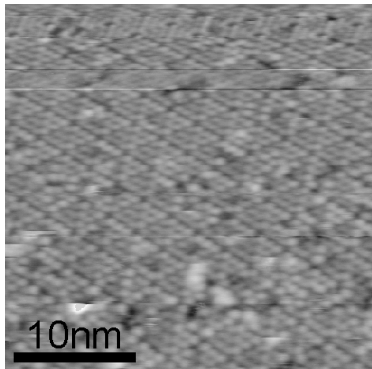


図 6 Si(111)7x7 の STM 像(Topo)

ルの SEM 像を取得できる(図 5(b)). 探針の吸収電流像はそれぞれの探針の形状、位置を忠実に反映しているため、吸収電流像から各探針の位置・形状をソフトウェア的に取得できる。これを利用し、探針間の距離の測定を行ったり、互いにぶつからないように自動で配置することが可能である。

探針の剛性が低いため、STM のスキャンも工夫している。通常 STM は三角波やノコギリ波を用いてスキャンを行うが、これらには多くの高調波が含まれる。剛性の低い STM ではこの高調波が探針を揺らしてしまふ。これを防ぐため、多探針 STM 用コントローラーでは正弦波を用いて STM スキャンを行うことができる。位置によりスキャン速度が変わってしまうが、正弦波には高調波が含まれないため、探針を揺らすことがない。

### 3. 性能紹介

#### 3.1. SEM

図 5 は探針を一边  $5\mu\text{m}$  の正方形にならべた際の SEM 像である。Stick-Slip 動作を用いると、約  $200\text{nm}$  の精度で探針を配置することができる。位置の測定は前記の SEM による自動配置を用いた。さらに DC ピ

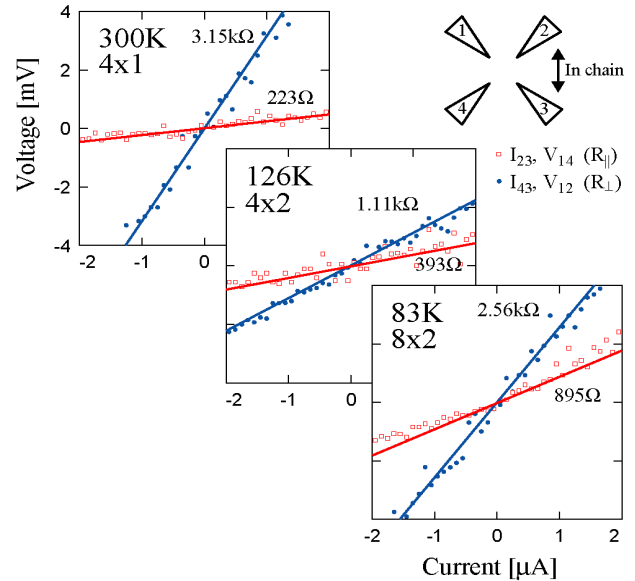


図 7 各種温度における Si(111)4x1-In の電気伝導測定。青は In 鎖に垂直方向、赤は平行方向の値を示す。

エゾ効果を用いることで、SEM の分解能までの精度で配置が可能となる。SEM の分解能は  $20\text{nm}$  程度で、探針の位置精度はこれが限界であった。我々の用いたタングステン探針の先端の直径が  $50\text{nm}$  程度であるので、探針の最小間隔は探針の先端径が決定している。よい探針を用いることで  $100\text{nm}$  の正方形に探針を並べることはできているが、CNT 探針など、より先端の細い探針を用いることで、より近づけることができると考えられる[19-21]。

#### 3.2. STM

図 6 は Si(111)7x7 超構造の STM 像である。機械研磨の PtIr 探針を用いている。7x7 超構造特有の DAS 構造が明確に見られ、STM として十分な能力があることがわかる。

#### 3.3. 電気伝導測定

各種温度における Si(111)4x1-In 表面の電気伝導測定が図 7 である。Si(111)4x1-In 表面は、x1 方向(In 鎖の方向)に非常に高い電気伝導をもつ、擬 1 次元伝導を持つ表面として知られている[15]。また室温で 4x1 構造、低温では順に 4x2、8x2 転移を起こし[22]、電気伝導度が劇的に下がるといことがわかっている[23]。今回開発した装置により、各温度での電気伝導度の異方性が測定可能となった。

各相における電気伝導度はどれも高い異方性を示しており、この表面が In 鎖方向に高い異方性を持つことがわかる。

#### 4. まとめ

我々のグループで作成した独立駆動型低温 4 探針 STM の技術上の工夫点を解説した。特に振動に関して、STM は十分な性能があるとはいえないが、装置の構造、制御方法を多探針 STM 用に工夫することで、実用に耐える多探針 STM が現時点でも製作可能といえる。

#### 文献

- 1) A. V. Ermakov and B. J. Hinch, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, (1997) 1571.
- 2) R. J. Collier and D. G. Hasko, *J. Appl. Phys.* **91**, (2002) 2547.
- 3) S. Hasegawa and F. Grey, *Surf. Sci.* **500**, (2002) 84.
- 4) Y. Ju, K. Inoue, M. Saka, and H. Ab'e, *Appl. Phys. Lett.* **81**, (2002) 3585.
- 5) T. Tanikawa, I. Matsuda, R. Hobara, and S. Hasegawa, *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* **1**, (2003) 50.
- 6) A. Bachtold, M. S. Fuhrer, S. Plyasunov, M. Forero, E. H. Anderson, A. Zettl, and P. L. McEuen, *Phys. Rev. Lett.* **84**, (2000) 6082.
- 7) X. Lin, X. B. He, T. Z. Yang, W. Guo, D. X. Shi, H.-J. Gao, D. D. Ma, S. T. Lee, F. Liu, and X. C. Xie, *Appl. Phys. Lett.* **89**, (2006) 043103.
- 8) O. Guise, H. Marbach, J. T. Yates, Jr., M.-C. Jung, J. Levy, and J. Ahner, *Rev. Sci. Instr.* **76**, (2005) 045107.
- 9) M. Ishikawa, M. Yoshimura, and K. Ueda, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, (2005) 1502.
- 10) K. Takami, M. Akai-Kasaya, A. Saito, M. Aono, and Y. Kuwahara, *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, (2005) L120.
- 11) O. Kubo, Y. Shingaya, M. Nakaya, M. Aono, and T. Nakayama, *Appl. Phys. Lett.* **88**, (2006) 254101.
- 12) I. Shiraki, F. Tanabe, R. Hobara, T. Nagao, and S. Hasegawa, *Surf. Sci.* **493**, (2001) 633.
- 13) H. Grube, B. C. Harrison, J. Jia, and J. J. Boland, *Rev. Sci. Instrum.* **72**, (2001) 4388.
- 14) S. Hasegawa, I. Shiraki, F. Tanabe, and R. Hobara, *Current Appl. Phys.* **2**, (2002) 465.
- 15) T. Kanagawa, R. Hobara, I. Matsuda, T. Tanikawa, A. Natori, and S. Hasegawa, *Phys. Rev. Lett.* **91**, (2003) 036805.
- 16) I. Matsuda, M. Ueno, T. Hirahara, R. Hobara, H. Morikawa, C. Liu, and S. Hasegawa, *Phys. Rev. Lett.* **93**, (2004) 236801.
- 17) R. Hobara, N. Nagamura, S. Hasegawa, I. Matsuda, et al, *Rev. Sci. Instrum.* **78**, (2007) 053705.
- 18) R. Hobara, S. Yoshimoto, S. Hasegawa, K. Sakamoto, *e-JSSNT*, **5**, (2007) 94.
- 19) T. Ikuno, M. Katayama, M. Kishida, K. Kamada, Y. Murata, T. Yasuda, S. Honda, J.-G. Lee, H. Mori, and K. Oura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, (2004) L644.
- 20) Y. Murata, S. Yoshimoto, M. Kishida, D. Maeda, T. Yasuda, T. Ikuno, S. Honda, H. Okado, R. Hobara, I. Matsuda, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, (2005) 5336.
- 21) S. Yoshimoto, Y. Murata, R. Hobara, I. Matsuda, M. Kishida, H. Konishi, T. Ikuno, D. Maeda, T. Yasuda, S. Honda, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, (2005) L1563.
- 22) H. W. Yeom, S. Takeda, E. Rotenberg, I. Matsuda, K. Horikoshi, J. Schaefer, C. M. Lee, S. D. Kevan, T. Ohta, T. Nagao, et al., *Phys. Rev. Lett.* **82**, (1999) 4898.
- 23) T. Tanikawa, I. Matsuda, T. Kanagawa, and S. Hasegawa, *Phys. Rev. Lett.* **93**, (2004) 016801.



保原 麗 (ほばら れい)

2006年 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程単位取得退学。以来多探針 STM を用いた電気伝導測定の研究に従事。



長谷川 修司 (はせがわ しゅうじ)

1985年 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻修士課程修了, 1985-1990年 (株)日立製作所基礎研究所研究員, 1990-1994年 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻助手, 1994年から 同准教授。表面・ナノ構造の物性研究をしつこく続ける。