

研究課題別研究評価

1. 研究課題名: 点接触境界構造ダイナミックスの原子直視観察

- 原子を観て、操り、測る実験法「アトムラボラトリー」 -

2. 研究者氏名: 木塚 徳志

3. 研究のねらい:

かつて病気は目に見えない悪魔が乗り移って罹ると信じられていた。顕微鏡によって、細菌やウイルスが発見されなければ、近代医学が芽生えることはなかった。現在の最先端ナノデバイス研究でも事情は同じである。原子を操ってナノデバイスを作ろうという時代に、その過程を観察しなければ、不良品の原因は不明のまま悪魔のせいになってしまう。どこのナノデバイス研究室にも潜むこうした悪魔の正体を見極めるために、顕微鏡をヴァージョンアップした「アトムラボラトリー」を開発することが本研究のねらいであった。構造のダイナミックスを原子レベルで直視して生中継し、更に構造を操って、出来あがった構造の物性をその場で評価できる原子世界の実験室が実現した。

新しく開発された手法は、実際に応用されて、その真価が分かる。本研究では、手法開発と共に、題目のナノメートルサイズの固体表面が接触してできる点接触境界（固体ポイントコンタクト）の応用研究も並行して進めた。点接触境界は、量子効果が現れる 1 次元バリスティック系であると予想され、電子輸送現象の基礎を解明するために、また電子デバイスやナノ構造材料要素への応用を図るために研究が進められてきた。半導体界面に形成される 2 次元電子ガスの量子ポイントコンタクトとは異なり、点接触境界は、固体の針の接触と変形によって作製され、その伝導領域は 3 次元である。従って、形状だけでなく原子配列も伝導に関わる因子となる。この形状と原子配列は、点接触境界に印加するときの応力値に応じて刻々と変化し、その構造ダイナミックスは、従来用いられてきた走査プローブ顕微鏡法や機械的制御破壊法では解析することが出来ない。このように、力学的作用によって、構造と電気伝導が変化する点接触境界は、原子配列、応力、および電気伝導のミリ秒ダイナミックスを同時に観察する本手法アトムラボラトリーを適用するには、正に好適な題材である。

4. 研究結果および自己評価:

ナノメートルデバイスの原子配列、電気伝導および力学特性を同時に解析できる「アトムラボラトリー」を、高分解能透過電子顕微鏡その場観察法を基盤にして、本研究 2 年目に世界に先駆けて独自に開発した。この手法を用いて、固体ポイントコンタクト、ナノメートルおよび原子ワイヤー、量子ドット、原子クラスター、原子サイズホール等のナノ構造を作製・加工し、その電気伝導特性と力学的特性について評価してきた。本研究の独創的な点は、作製・加工、構造観察、物性評価の3つの面で、それらを直接リンクさせて、ナノ材料の研究を進めてきたことである。作製・加工しているとき常に、その場で局所構造のダイナミックスを原子レベル、ミリ秒単位で連続的に観察、解明し、同時に構造と環境条件・物性の変化を対応させて解析出来るのは本手法だけである。他の研究のように、試料作製後、もしくは物性測定後に静的に構造を観察したり、多くの試料の平均的な物性を評価するのではなく、注目するナノ構造個々の原子配列と、その時現れる構造に対応する物性を明らかにしてきた。以下に手法開発と実験結果について述べる。

4-1 . 手法の開発過程と構成

さきがけ研究に着手するまで我々が採用していた方法と同様に、表面・界面および内部構造を観察出来る原子直視観察系、1原子を引き離す力を測定出来る微小力測定系、1原子を流れる電流を測定できる高感度電気伝導測定系、およびこれらの測定結果を全て記録する記録系で本手法は構成されている。測定された情報量は膨大であり、それを解析するためには、従来の解析技術では実質的に不可能であるため、そのための解析系も併せて開発した。具体的に製作した機器とコンピューターソフトは以下の通りである。

1. 試料操作系

- ・ ピエゾ駆動 3 軸変位型カンチレバーホルダーおよび駆動電源
- ・ カンチレバーホルダー側ゴニオメーターステージおよび駆動電源
- ・ ピエゾ駆動 3 軸変位型対向側試料ホルダーおよび駆動電源
- ・ 対向試料ホルダー側ゴニオメーターステージおよび駆動電源
- ・ その場真空蒸着装置

2. 力測定系

- ・ レーザー入射装置
- ・ レーザー受光装置
- ・ 4 分割光ダイオード増幅回路

3. コンダクタンス測定系

- ・ 印加電圧用回路
- ・ 電流検出用増幅回路

4. 構造・結像系

- ・ 試料室枠
- ・ 対物ポールピース（改造）
- ・ 対物レンズ絞りおよび駆動装置（改造）

5. 真空系

- ・ 真空排気装置

6. 画像・信号動的記録系

- ・ 画像・信号時間同期記録ソフト
- ・ 観察時画像・信号時間同期表示ソフト
- ・ 再生時画像・信号時間同期表示解析ソフト

7. 周辺装置

- ・ 試料ホルダー予備排気装置
- ・ イオン照射式試料薄片化装置
- ・ 試料表面被覆用真空蒸着装置

最終的に完成した本装置の試料操作分解能は 10pm、観察空間分解能は 0.1nm、応力検出最小値は ~10pN、および電流検出最小値は ~10pA である。各信号は 260 μ 秒間隔で記録出来る。原子スケールの構造、力学特性、伝導特性のダイナミックスを十分に解析できる分解能である。

本装置では、構造、力、コンダクタンスの時間変化だけでなく、それらはもとより、従来のいかな

る手法でも決して得られない、力学現象を的確に表す歪み、応力や電流密度といった物理量変化と、それらの関係である歪み - 応力関係、歪み - 電流密度関係を実験的に直接得ることが出来る。これらの新しい測定が実験的に可能になって、力学変形を基盤とするこれまでにない原子スケールのナノデバイス研究分野が新たに開拓された。

4-2. 応用例 - 実験結果

1) 固体ポイントコンタクトの構造・電気伝導・力学特性

ナノメートルチップの接触による固体ポイントコンタクト(接点)の形成、その後の変形、疲労、破断等の過程における原子運動、コンダクタンスおよび印加された応力を観察した。変形の最も基本的な完全格子の原子面間の滑り、双晶形成、転位の導入・移動・消滅、相変態、引き上げ型結晶成長、粒界滑り、接触・接合時の原子拡散、単原子ネック形成、孤立クラスターの変形等の過程を初めて明らかにした。特徴的な結果は、以下の通りである。

- (1) 金や銅の数原子巾のポイントコンタクトはバリスティックな伝導を示すが、単原子が1列に連結する原子ワイヤーでは、このバリスティック伝導は生じないことを発見した。また、その強度と弾性限界は、バルクのそれらと比較して100倍程度に増加することを見出した。
- (2) ナノメートルシリコンや金クラスターは、弾性限界がバルクの50倍以上に増加し、かつ繰り返し変形しても破壊しないことを発見した。
- (3) 表面を清浄化して半導体を接合すると、内部強度を上回る異常強度が得られること等の新しい現象を見出した。
- (4) 孤立金属クラスターと半導体を使って、世界で最も小さなトンネル接合構造や量子ドット構造(ドット径2nm)を作製し、その力学的・伝導的性質を実験的に明らかにした。

2) カーボンナノチューブ電界放出特性、ナノチューブ間接合と伝導特性

最も注目されるナノ材料の1つであるカーボンナノチューブの電界放出をその場で観察し、放出中に成長する原子サイズの突起がその放出源であることを明らかにした。印加電圧と放出電流の関係を調べ、次世代モニター素子への応用を進めた。ナノチューブ同士を接合する手法を見出し、接合境界の強度と伝導特性を明らかにした。これは、ナノチューブ等のフラレーンを用いたナノネットワーク創製の伝導、強度の両面に関する最も基礎となる研究である。

3) 原子を個別に取り除く電子線加工とナノデバイス作製

高密度電子線を固体表面に照射したときの表面・界面の原子拡散と原子脱離の過程を初めて直接観察した。この原子脱離現象を制御して、原子レベルの電子線加工が出来ることを提案した。加工精度の飛躍的な向上と、その加工過程の原子直視観察に成功した。1998年には、加工孔径0.86nm(4原子間隔)、加工孔間隔0.63nm(3原子間隔)の加工精度を達成した。2000年には、1原子幅(0.2nm)の加工に成功し、極限の精度に達した。いずれも、当時の電子線加工における世界最高の加工精度である。ナノサイズの細く深い孔は、この手法によってのみ作製可能である。

応用研究では、このように基礎物理学的にも、工学・産業的にも、ナノ物質研究にブレークスルーをもたらす結果が得られている。

自己評価と今後の展開

ナノ構造物質を構成する原子個々の元素と配置を設計どおりに操作することは、材料構造制御技術の目指す最終的な到達点であり、その結果現れる特異な物性を発見して利用し、新規な機能を実現することが、ナノテクノロジー研究の目標である。ナノ構造を力学作用、気相堆積、電子線加工等で原子操作し、それと同時に構造と力学的・電気伝導的性質をその場で評価できる「アトムラボラトリー」は、間違いなく今後のナノテクノロジー研究の実験的基盤になる。今後、この手法によって、著者はナノテクノロジー研究の1分野を切り開き、指導的立場で独創的な研究を展開することを目指している。

本研究の手法開発と応用研究では、いずれも、さきがけ研究を始める前までの著者の研究企画力、実験技術と知識、物理学的素養が背景にあって、はじめて前述の成果を得ることが出来る。同じ予算規模と研究期間で、これほどの成果をあげられる研究者は、国内外を問わず、また若手に限らず著者だけであると自負する。もちろん、さきがけ研究として本研究成果を評価すれば、十分すぎるほどの成果が得られたといえよう。

本研究で開発された手法は、新しい研究分野を切り開く独創的な手法であるが、現在、予算の制限もあり、時間的にも開発されて間もないこともあって、機能は基礎的なものに限定されている。さらに大きな予算が得られれば、魅力的な新機能が追加でき、より拡張された応用研究が可能になることは、これまでの研究経過から容易に想出来よう。すでに、次のステップ、さらにその次のステップへの研究構想と具体的な計画を持っているが、残念ながら予算だけが欠乏している。アイデアは無限であるが、実際の実験はものが無くては始まらない。

これまでの研究は関連する学会では極めて高く評価されて、著者はすでに若手としては異例の合計30もの賞を受賞している（さきがけ研究21以後のものはそのうち10）。なお、分野の異なるナノ研究になじみのない科学技術関係者の中には、本手法は従来の顕微鏡法を複合化しただけで独創性がない、と評価する者もいるが、それは明らかに間違いである。第一、従来そうした複合化の発想自体が無かったし、当然実現もされていなかった。さらに、この評価書でも述べたように、本手法では、これまでいかなる手法でも調べることが出来なかった、ナノ構造の構造、力学・伝導特性のダイナミクスを実験的に直接解明できるという、全く新しい機能を有している。その機能を実現するために、従来の技術を当然利用しただけであって、単に複合化だけでは、新しい機能を得る発想は生まれようがない。新しい機能を得るために、従来の手法を複合化することが批判されるのであれば、ノーベル賞を受賞した走査プローブ顕微鏡や電子顕微鏡の発明の科学への貢献も否定しなければならない。単純な複合化だけでは、本研究者は前述のように多くの受賞は出来ないはずである。また先駆性に関しても、知識が不十分な人からは類似研究があると誤解されるが、これは著者の論文の後に発表した何人かの者、特に年長の日本人が科学的に不適切な判断をして、その後発の論文に著者の論文を引用していないだけのことである。海外の著名な研究者は、この点を痛烈に批判している。ナノ構造体の接触・変形を操作して、その過程の原子を直視したのはまぎれもなく本研究者が初めてであることは、論文発表の詳細な時期を調べれば自明である。本研究者の所属した科学技術振興事業団では、本研究成果に対してこうした誤解が生じないように正しく評価されることを願う次第である。また、そうした正しい評価をすることが、科学技術振興事業団の存在する理由の一つではないかと信じている。

5. 領域総括の見解

原子の挙動を電子顕微鏡下で直視観察することは、現在の高度化技術時代にあっても、限られたエキスパート研究者のみが可能な難事である。本研究者は、徒手空拳というべき状況での個人的努力によって、固体同士の点接触によって生じる原子構造体の動力学と、それに関連する諸物性を実時間、実空間的に解明するという野心的発想を評価されて本領域研究者に採択された。高度な実験装置と周辺機器の自作、試料操作と動的画像解析のコンピューター制御システム開発など多くの技術的課題を精力的に克服し、その独自技術を駆使して原子レベル・ナノ構造の力学的、電気的特性に関して先駆的成果を得るに至った。

これは、さきがけ研究の趣旨を体現した代表的な研究成果と言える。3年間の研究期間に渡って領域研究会議などの機会に本領域研究者と積極的な交流を行ない、本研究領域全体の活性化に貢献したことも高く評価したい。その成果は、多くの英文原著論文、国際会議報告などで内外に好評され、高い評価を得ている。今後の発展が期待される。

6. 主な論文等

- 1) Tokushi Kizuka, Atomic process of point contacts in gold studied by time-resolved high-resolution transmission electron microscopy, *Phys. Rev. Lett.* 81, 4448 (1998).
- 2) Tokushi Kizuka, Atomistic visualization of deformation in gold, *Phys. Rev.* B57, 11158 (1998).
- 3) Tokushi Kizuka, Direct atomistic observation of deformation in multiwalled carbon nanotubes, *Phys. Rev.* B59, 4646 (1999).
- 4) Tokushi Kizuka and Kazue Hosoki, In-situ high-resolution transmission electron microscopy of direct bonding processes between silicon tips with oxide surfaces at room temperature, *Appl. Phys. Lett.* 75, 2743 (1999).
- 5) Tokushi Kizuka, Direct atomistic observation of a contact process between crystalline silicon surfaces at room temperature, *Phys. Rev.* B63, 033309 (2001).
- 6) Tokushi Kizuka, Shinjiro Umehara and Satoru Fujisawa, Metal-insulator transition in single atom gold wires, *Jpn. J. Appl. Phys.* 41, L71 (2001).
- 7) Tokushi Kizuka, Hajime Ohmi, Takao Sumi, Katsuyoshi Kumazawa, Shunji Deguchi, Mikio Naruse, Satoru Fujisawa, Shinya Sasaki, Akira Yabe and Yuji Enomoto, Simultaneous Observation of Millisecond Dynamics in Atomistic Structure, Force and Conductance on the Basis of Transmission Electron Microscopy, *Jpn. J. Appl. Phys.* 41, L170 (2001).
- 8) 木塚徳志, 固体力学現象の原子挙動, 固体物理, 6巻 (2000), p.383.

なお、さきがけ研究 21 に関連する現在までの発表等は、次の通りである。

原著論文 13 英文総説 4 国際会議論文 10 邦文解説 18 受賞 10 招待講演 30 特許 1 新聞・報道 (受賞紹介含む) 18