

氏 名	つづ い ま くす 筒 井 真 楠
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	工 博 第 2653 号
学位授与の日付	平 成 18 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 材 料 工 学 専 攻
学位論文題目	Study of Electron Transport in Atomic and Molecular Conductors using MCBJ Technique (MCBJ 技法を用いた原子・分子導電体の電子伝導に関する研究)
論文調査委員	(主 査) 教 授 酒 井 明 教 授 杉 村 博 之 教 授 松 重 和 美

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、Mechanically Controllable Break Junction (機械的制御による破断接合, 以下 MCBJ) の手法を用いて原子・分子サイズの接点の電子伝導特性を, 主に高バイアス域で調べた研究をまとめたものであり, 4 章からなっている。

第 1 章は緒言であり, 研究全体の背景と目的が述べられるとともに, 原子・分子サイズ導電体の配線材料としての重要性, および MCBJ 法の特長と有用性が指摘されている。

第 2 章では最初に MCBJ 技法の基本原則が紹介され, 次いで実際に使用された MCBJ 装置の構成と測定システム, 並びに MCBJ 用試料の調整法が述べられている。

第 3 章は金属原子サイズ接点の実効温度に関する研究成果を論述した章であり, 3.1 から 3.6 までの 6 節構成となっている。

3.1—3.3 では研究の背景が述べられており, 初めに電子の平均自由行程よりも小さな接点とそのコンダクタンスの一般論, 特にコンダクタンスの量子化が紹介され, さらに金属の原子サイズ接点の特徴が 3.2 で論じられている。3.3 では高バイアス下における現象に的を絞り, 金属単原子接点の高バイアス不安定化現象が説明されている。

3.4 では本研究の測定対象であるコンダクタンス 2 準位揺らぎが導入され, 2 準位揺らぎ周波数が接点実効温度と関連していることが示されている。

3.5・3.6 では液体窒素温度における実験結果が報告されており, 最初に測定法が, 次いで 2 準位揺らぎ周波数の測定結果とその統計的解析手法が述べられている。これは高バイアス下では 2 準位揺らぎ周波数が広く分布するため, その分布が最大となる周波数を採用してそのバイアス依存性から接点実効温度の振る舞いを推定する, というものである。次いでこの手法を利用した研究結果が報告されており, その中で, Au・Cu の場合には 0.6 V まで原子サイズ接点の自己発熱は無視できること, しかし Ag では 0.50V, Zn では 0.35V 以上のバイアスで接点実効温度が周囲温度よりも高くなること, などの知見が得られている。また, バイアス/電流が 2 準位揺らぎ周波数に与える影響を測るパラメータについては, 理論値と一致した妥当な値が得られている。なお, 自己発熱が起きるバイアス値の金属による相異は, 金属の融点の違いに関連していることが示唆されている。

第 4 章は, 電極間に架橋した 1 本の金属的 MWNT (多層カーボンナノチューブ) の高バイアス特性に関する研究結果を扱っており, 4.1 から 4.6 までの 6 節構成となっている。

4.1—4.3 は MWNT に関する研究の序論であり, MWNT の性質とその伝導特性の特徴が紹介されるとともに, 高バイアス伝導に関する従来の研究結果とその問題点, 特にバリスティック伝導であるか拡散伝導であるかという問題, が指摘されている。また 4.3 では, 高バイアス下での MWNT の破断に関する従来の研究結果が概説されている。

4.4 では MWNT の $G-V$ 特性に関する研究結果が述べられており, 最初に MCBJ の電極間に MWNT を架橋する手法が, 次いでコンダクタンスの測定結果が示されている。MWNT のコンダクタンスはバイアスに比例して増加し, この結果は MWNT のバリスティック伝導を主張する従来の報告と合致している。また電極間距離を変化させるとコンダクタンス

と dG/dV は相関した変化を示し、この結果から、コンダクタンスには MWNT/電極界面の接触抵抗が無視できない影響を与えていることが示唆されている。

4.5では、高バイアス域で観測されるコンダクタンスの不可逆的なステップ状の増加と、その解析結果が詳述されている。コンダクタンスの不可逆的な増加については、これが MWNT/電極界面の接触抵抗の低下によるものであり、おそらくは接点付近の電極金属のアニール効果に起因することが示されている。またこのコンダクタンスの増加がバイアスの一方の極性でのみ現れる例が観測されているが、この現象は、MWNT がバリスティック伝導体であり、ホット電子が注入される陽極側で専ら発熱と接点のアニールが起きているとして説明することが可能である。

4.6では高バイアス/高電流による MWNT の破断が取り上げられている。最外層から一層ずつ破壊してゆく従来型の破断に加え、本論文では破断直前にコンダクタンスが急激に増加した後一気に全体が破断する新しい様式の破断が報告されている。この破断の特徴として、破断直前にまで近づくと $G-V$ 特性全体が不可逆的に変化してしまうこと、破断バイアスが約 3V で MWNT の個体差によらずほぼ一定であること、破断電力が低バイアスコンダクタンス（接触抵抗を表している）と相関を示すこと、などが明らかにされている。これらの結果を基に、この新タイプの破断は MWNT/電極界面で起きており、電極と接触する MWNT 最外層の局所的な破壊を伴うものであることが推定されている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、Mechanically Controllable Break Junction（機械的制御による破断接合、以下 MCBJ）を用いて原子・分子サイズの接点を形成し、それらの電子伝導特性を実験的に解明した研究を論述したものであり、得られた主な成果は以下のとおりである。

1. 金属原子サイズ接点のコンダクタンス 2 準位揺らぎの計測を初めて高いバイアス域に拡張し、接点の実効温度の振る舞いを評価する手法を構築した。この手法を応用し、液体窒素温度において各種金属の原子サイズ接点の実効温度が周囲温度よりも高くなるバイアス値を導出した。また液体ヘリウム温度において、金原子サイズ接点の実効温度がバイアスに比例することを明らかにした。これらの結果は、原子サイズ接点の熱輸送に関して新たな問題を提起するものとなっている。
2. 1 本の金属的な多層カーボンナノチューブ（以下 MWNT）を電極間に架橋した接点を作成することに初めて成功し、MWNT のコンダクタンスがバイアスに比例して増加することを確認した。また高バイアス域でコンダクタンスが不可逆的な増加を示し、この増加がバイアスの一方の極性でしか起こらない例があることを見出した。この現象の詳細な解析を行い、これが MWNT/電極界面のアニール効果により説明できることを示した。この結果は MWNT のバリスティック伝導を示唆している。
3. 高バイアス/高電流による MWNT の破断を系統的に調べ、破断が約 3V 付近で起きること、従来のものとは異なるタイプの破断が存在すること、を明らかにした。破断電力と MWNT の低バイアスコンダクタンスとの関連を調べ、この新タイプの破断について、電極との接触する MWNT 最外層の局所的な破壊を考慮した破断機構を提案した。

以上要するに、本論文は原子・分子サイズ導電体の高バイアス電子伝導特性に関して多くの有用な知見を与えるものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また平成18年2月17日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行なった結果、合格と認めた。