

平成 22 年 5 月 15 日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008～2009

課題番号：20710108

研究課題名（和文）電子放出サイトの原子レベル制御と電子波干渉電子源の開発

研究課題名（英文）Development of the field emitter for electron wave interference and control of emission sites in atomic scale.

研究代表者

村上 勝久（MURAKAMI KATSUHISA）

大阪大学・極限量子科学研究センター・特任研究員

研究者番号：20403123

研究成果の概要（和文）：ビーム誘起堆積 Pt 冷陰極を用いた電子波干渉冷陰極の開発と、電子波干渉冷陰極の電子放出サイトのその場観察を行った。その結果、電子波干渉パターンは一つの Pt ナノ結晶中の 2 点から電子が放出した時にのみ生じることを明らかにした。また、電界放出および電界蒸発時の Pt 冷陰極の透過型電子顕微鏡その場観察を行った。その結果、電界蒸発時に Pt ナノ結晶が Pt 冷陰極先端に移動して先鋭化することが分かり、電子放出サイトの原子レベルでの制御の可能性を示した。

研究成果の概要（英文）：Development of beam deposited Pt field emitters for electron wave interference and in-situ observations of the electron emission sites of these emitters were investigated. These results indicated that the electron wave interference is generated by electrons emitted from two adjacent emission sites within a Pt nanocrystal. Further, in-situ transmission electron microscopy observations of the Pt field emitter during field emission and field evaporation were investigated. The Pt nanocrystals were found to move to the top of Pt field emitter during field evaporation. These results show the possibility of the control of electron emission sites in atomic scale by field evaporation.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・マイクロ・ナノデバイス

キーワード：微小電子源、電子波干渉、ビーム誘起堆積、電界放射顕微鏡、電界イオン顕微鏡

## 1. 研究開始当初の背景

電子顕微鏡技術の発展に伴い走査型電子顕微鏡・透過型電子顕微鏡や電子ビーム描画装置などの技術は、ナノ材料やナノ構造の観

察・分析・加工にとって必要不可欠な技術となった。電子ビームを用いたデバイスや分析加工装置の性能向上には、電界放出電子源から得られるエネルギー幅の狭いコヒーレン

トな電子が重要な役割を果たしている。また近年、電界放出電子源から得られるコヒーレント電子の電子波の性質を利用して電子の位相情報から微小領域の電場・磁場を可視化する電子線ホログラフィという手法が注目を集めている。この技術を用いることで、AB効果の検証実験や超伝導体中の磁束量子の観測、CMOSトランジスタ断面の不純物の二次元分布測定など、学術的なものから産業応用的なものまで幅広い分野で、これまで実現不可能であった微小領域での電磁氣的性質を直視することが可能になってきている。しかし一方で、ナノサイズの微小電子源から放射される電界放出電子を利用して様々な高性能デバイスを実現しようとする真空ナノエレクトロニクス分野では、従来の真空管デバイスや半導体デバイスの性能に勝る超高周波デバイスや耐環境性デバイス、またフラットパネルディスプレイや種々のセンサーなどの研究は行われているが、電界放出によるコヒーレントな電子を扱っているにもかかわらず、その特性を利用したデバイスは提案されていない。我々のグループではコヒーレント電子波を利用したデバイスの実現に向けた基礎的な研究として、電子ビーム誘起堆積法を用いてナノメートルの間隔で隣接した電子放出サイトを冷陰極上に設計・作製し、隣接2点の電子放出サイトから放出した電子波が干渉する可能性を検証してきた。これまでに、400°Cで熱処理をすることによって冷陰極先端に10 nm間隔で隣接したナノ突起を作製することに成功し、その冷陰極から放射された電子が縞状の電子放出パターンを示すことを確認した。さらに、縞状の電子放出パターンがフラウンホーファ回折モデルでの計算結果とよい一致を示すことを明らかにした。これらの縞状の電子放出パターンは電子波の干渉パターンである可能性が非常に高いが、現状では冷陰極上の電子放出サイトを同定していないため、独立した2点の電子放出サイトから放出された電子波の干渉パターンであるという確証はない。本研究ではこれらの成果を発展させて、冷陰極上の電子放出サイトの観察を行い、電子放出サイト分布から計算した電子波の回折パターンと縞状の電子放出パターンを比較することによって、独立した電子放出サイトから放出した電子波が干渉することを検証し、真空中での電子波干渉を利用したデバイス応用などへの展開を図る。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は電子ビーム誘起堆積法を用いて作製したPt冷陰極上の電子放出サイトを同定し、電子放出サイト分布から計算した電子波の回折パターンと電子放出

パターンを比較することによって、独立した電子放出サイトから放出した電子波が干渉する可能性を検証することにある。更に、人為的に電子放出サイトを制御して独立した2点の電子放出サイトを有する電子波干渉電子源を開発し、真空中での電子波干渉を利用したデバイス応用への可能性を探ることにある。

## 3. 研究の方法

本研究では、ビーム誘起堆積プロセス(現有装置)を用いて作製したPt冷陰極の電子放出パターンと電子放出サイト分布の評価を行い、電子放出サイト分布から計算した電子波の回折パターンと電子放出パターンを比較することによって、独立した電子放出サイトから放出した電子波が干渉する可能性を検証することを目的としている。電子放出サイトは原子サイズレベルで同定するため、電界イオン顕微鏡を用いて電子放出サイトの評価を行う。また電子放出サイトの評価からビーム誘起堆積プロセスの条件を最適化し、電子放出サイトを人為的に制御する手法を確立する。目的達成のための具体的な研究方法は以下の通りである。

### (1)電界放射顕微鏡(現有装置)への電子放出サイト評価機能の追加

現有装置である電界放射顕微鏡に本予算で購入した蛍光面付マイクロチャネルプレートを取り付けることによって、電子放出パターンおよび電子放出サイト評価装置を作製する。電子放出サイト分布から計算した電子波の回折パターンと電子放出パターンを比較することによって、独立した電子放出サイトから放出した電子波が干渉する可能性を検証するためには、電子放出パターンと電子放出サイトの分布を、同一装置内で交互に観測する必要がある。電子放出パターンの評価は、電子放出パターンを拡大して観察することができる電界放射顕微鏡(Field Emission Microscope、現有装置)を、電子放出サイトの評価には電界イオン顕微鏡(Field Ion Microscope)を用いる。一般に電界放出では電子放出サイトは電界集中のしやすさ(陰極の形状)と仕事関数によって決定される。そのため、陰極材料の局所的な仕事関数に大きな変動がない限り、電子放出サイトは陰極先端で最も電界が集中している箇所となる。電界イオン顕微鏡では陰極先端にHeやNeなどの不活性ガスを吸着させ電界放出と逆バイアスの高電圧を印加する。吸着ガス原子は陰極先端の最も電界の集中している箇所からイオン化しマイクロチャネルプレートに衝突する。そのため、電界イオン顕微鏡を用い

ると冷陰極先端の原子サイズレベルでの電界集中の分布をマイクロチャンネルプレート上に拡大して観測することが可能である。この手法により電子放出サイトの同定を行う。

#### (2) 熱処理をしたビーム誘起堆積 Pt の構造評価

これまでに、ビーム誘起堆積プロセスで作製した Pt 冷陰極を 400°C で熱処理することによって、陰極先端に 10 nm 間隔のナノ突起を作製することに成功し、走査型電子顕微鏡で構造を観察している。しかし、電子放出サイトは原子サイズレベルで議論されるべきものであるため、原子サイズレベルでの構造の評価が重要となってくる。そこで電子放出サイトの同定の前段階として(1)の装置の改良と平行して、熱処理を行って表面にナノ突起を作製した電子ビーム誘起堆積 Pt の構造を透過型電子顕微鏡を用いて評価する。これらの評価によってナノ突起作製のための熱処理条件の最適化を行う。また、これまでの研究により電子ビーム誘起堆積 Pt は 400°C 熱処理をすることによって抵抗率が 1 Ωcm から  $0.5 \times 10^{-3} \Omega\text{cm}$  へと約 3 桁減少することが分かっている。電子ビーム誘起堆積 Pt の抵抗率の変化も干渉縞の発生に影響していると考えられることから、熱処理による抵抗率の変化の原因も透過型電子顕微鏡を用いて評価する。

#### (3) ビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の電子放出パターンおよび電子放出サイト分布の評価

電子放出パターンおよび電子放出サイト評価装置を用いて、(2)で最適化した条件で作製したビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の電子放出パターンと電子放出サイトの分布を評価する。得られた電子放出サイトの分布から計算した電子波の回折パターンと電子放出パターンを比較することによって、独立した電子放出サイトから放出した電子波が干渉する可能性を検証する。

#### (4) ビーム誘起堆積プロセスおよび熱処理条件の最適化による電子放出サイトの制御

(3)での電子放出パターンと電子放出サイトの評価結果から、さらにビーム誘起堆積プロセス(電子ビームの照射パターン、各描画点でのビーム滞留時間)や熱処理条件(温度、時間、ガス雰囲気)のプロセスパラメータを最適化し電子放出サイトの制御の可能性を探る。また、プロセスパラメータの最適化だけでは電子放出サイトの制御が困難であった場合には、その他の手法による電子放出サイトの制御の可能性も探る。一例として電界蒸

発を用いた電子放出サイトの制御を予定している。電界蒸発では陰極表面に強電界を印加することにより、陰極表面の原子がイオン化し表面から離脱する。そのため、電界イオン顕微鏡像で電子放出サイトを観測しながら、更に高い電界を印加することによって陰極先端の最も電界が集中している原子(電子放出サイト)から順に原子を蒸発させることが可能である。この手法を用いて電子放出サイトの制御を試みる。

以上の(1)~(4)の結果から、真空中での電子波干渉を利用したデバイス(例えば小型電子線ホログラフィ顕微鏡装置、高速スイッチング素子、小型磁気センサーなど)への応用の可能性を探る。

### 4. 研究成果

#### (1) 熱処理をしたビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の構造評価

熱処理前は平均粒径  $1.9 \pm 0.3 \text{ nm}$  の Pt ナノ結晶がアモルファスカーボンマトリックス中央に分布していたが、450°C 熱処理後は平均粒径が  $4.3 \pm 1.0 \text{ nm}$  と粒成長していることがわかった。これらの結果は、熱処理によって Pt ナノ結晶の粒径の増大し、Pt ナノ結晶同士が相互接触したために抵抗率が減少した可能性を示唆している。図1に熱処理前後での Pt 冷陰極の透過型電子顕微鏡写真を示す。

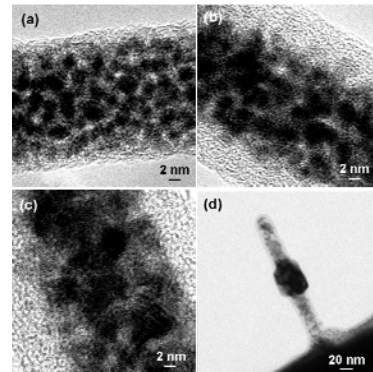


図1: Pt 冷陰極の透過型電子顕微鏡写真。(a) 堆積直後 (b) 350 度熱処理。(c) 450 度熱処理。(d) 500 度熱処理

#### (2) ビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の電子放出パターンおよび電子放出サイト分布の評価

集束イオンビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の電子放出パターンと電子放出サイトを電界放射顕微鏡および電界イオン顕微鏡を用いて観察した。図2に(a)電子波干渉パターン(b)電子波干渉パターンの電界イオン顕微鏡像(c)電界イオン顕微鏡像から計算したフラウンホーファ回折モデルの重ねあわせによる電子波の回折パターンの二次元強度分布を示

す。電界放射顕微鏡像から、特徴的な縞状の電子放出パターンを観測した。また縞状の電子放出パターンは室温測定では不安定であるが、冷却すると安定することが分かった。これらの縞状の電子放出パターンは、フラウンホーファ回折モデルでの計算結果と比較的よい一致を示した。更に、縞状電子放出パターンを観測した時の電子放出サイトを電界イオン顕微鏡により観察を行った。縞状の電子放出パターンが観測されたときの電界イオン顕微鏡像では Pt ナノ結晶の結晶サイズ(2~3 nm)以下の距離で離れた隣接する二点の電子放出サイトを観察した。縞状の電子放出パターンではないときは、電子放出サイト間の距離は Pt ナノ結晶の結晶サイズよりも離れていた。電界放射顕微鏡像と電界イオン顕微鏡像から、Pt ナノ結晶の結晶サイズよりも短い距離の電子放出サイトでは電子波干渉が生じ、それ以外では電子波干渉が起こらないと仮定して、フラウンホーファ回折モデルでの計算を行ったところ、電界放射顕微鏡像と良い一致を示す計算結果が得られた。これらの結果は、縞状の電子放出パターンは、一つの Pt ナノ結晶中の隣接する二点の電子放出サイトから生じた電子波の干渉パターンであることを示している。

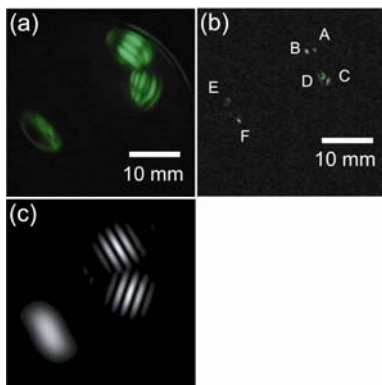


図 2 : (a)電子波干渉パターン。(b)電界イオン顕微鏡像(c)電界イオン顕微鏡像から計算したフラウンホーファ回折モデルの2次元強度分布。

(3) 電界放出および電界蒸発時の Pt 冷陰極の透過型電子顕微鏡その場観察

電子ビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の電界放射及び電界蒸発時の先端構造を観察することを目的として、透過型電子顕微鏡その場観察を行った。電界放射時では印加電圧 140 V で最大 480 nA の電界放射電流を検出した。その前後での透過型電子顕微鏡観察では先端及び内部での構造の変化は見られなかった。一方、電界蒸発時では 100 V で最大 127 nA のイオン電流を検出した。その前後での透過型電子顕微鏡観察では、図 3 に示すように先端

が先鋭化され、その先端に Pt ナノ結晶が動いていることが分かった。これらの結果は、ビーム誘起堆積 Pt 冷陰極の電子放出サイトの電界蒸発による制御の可能性を示唆している。

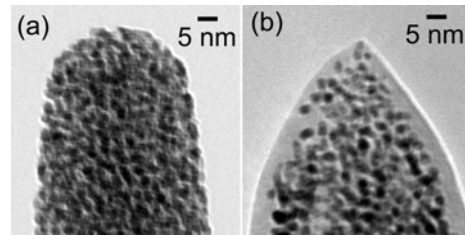


図 3 : Pt 冷陰極先端の透過型電子顕微鏡像 (a)電界蒸発前(b)電界蒸発後

5 . 主な発表論文等

( 研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線 )

[ 雑誌論文 ] ( 計 4 件 )

K. Murakami, T. Matsuo, F. Wakaya, and M. Takai, Electron wave interference induced by electrons emitted from Pt field emitter fabricated by focused ion beam induced deposition, *Journal of Vacuum Science and Technology B*, **28** pp.C2A9-CSA12 (2010) 査読有

K. Murakami, N. Matsubara, S. Ichikawa, F. Wakaya, and M. Takai, *In situ* transmission electron microscopy observation of electron beam deposited Pt field emitter during field emission and field evaporation, *Journal of Vacuum Science and Technology B*, **28** pp.C2A13-CSA15 (2010) 査読有

K. Murakami, S. Nishihara, N. Matsubara, S. Ichikawa, F. Wakaya, and M. Takai, Superposition of fringelike electron emission pattern from radical oxygen gas exposed Pt field emitter fabricated by electron beam induced deposition, *Journal of Vacuum Science and Technology B*, **27** pp.721-724 (2009) 査読有

K. Murakami, N. Matsubara, S. Ichikawa, T. Kisa, T. Nakayama, K. Takamoto, F. Wakaya, M. Takai, s. Petersen, B. Amon, and H. Ryssel, Transmission Electron Microscopy Observation of Pt Pillar Fabricated by Electron Beam Induced Deposition, *Japanese Journal of Applied Physics*, **48** pp. 06FF12 (2009) 査読有

[ 学会発表 ] ( 計 11 件 )

K. Murakami, Observation of electron

wave interference pattern from Pt field emitter fabricated by beam induced deposition, The 2nd Japan-Korea Vacuum Nanoelectronics Workshop, 4 March 2010, Hamamatsu, Japan

K. Murakami, Observation of Electron wave Interference Pattern and Electron emission Site of Pt Nanocrystalline Field Emitter by Field emission Microscopy and Field ion Microscopy, 7th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices, 8 December 2009, Maui, Hawaii, USA.

K. Murakami, Fabrication of Pt nanocrystalline field emitter for electron wave interference by beam induced deposition, The 22nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 19 November 2009, Sapporo, Japan.

K. Murakami, Electron wave interference induced by electrons emitted from Pt field emitter fabricated by focused ion beam induced deposition, The 22nd International Vacuum Nanoelectronics Conference, 21 July 2009, Hamamatsu, Japan.

K. Murakami, In situ transmission electron microscope observation of electron beam deposited Pt field emitter under field emission and field evaporation, The 22nd International Vacuum Nanoelectronics Conference, 21 July 2009, Hamamatsu, Japan.

K. Murakami, Transmission Electron Microscope Observation of Pt Pillar Fabricated by Electron Beam Induced Deposition, The 21st International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 27 October 2008, Fukuoka, Japan

K. Murakami, Observation of fringelike electron emission pattern from radical oxygen gas exposed Pt field emitter fabricated by electron beam induced deposition, The 21st International Vacuum Nanoelectronics Conference, 13 July 2008, Poland.

[ その他 ]

Shoulders-Gray-Spindt Award (for novel and ingenious young scientist's work) The 21st International Vacuum Nanoelectronics Conference, 13 -17 July 2008, Poland.

6 . 研究組織

(1)研究代表者

村上 勝久 (MURAKAMI KATSUHISA)  
大阪大学・極限量子科学研究センター・特  
任研究員

研究者番号 : 20403123

(2)研究分担者

( )

研究者番号:

(3)連携研究者

( )

研究者番号 :