

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 22 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25630168

研究課題名(和文) ナノスケール高感度電圧電流計測のための導電性プローブ顕微鏡システムの構築

研究課題名(英文) Development of conductive scanning probe microscopy system for highly sensitive current-voltage measurement at nanoscale

研究代表者

村上 勝久 (Murakami, Katsuhisa)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：20403123

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：導電性プローブ顕微鏡を用いたナノスケールでの電圧印可電流計測の高感度化を目的として同軸構造の導電性プローブの試作および静電シールドの設置による変位電流の抑制について研究を実施した。集束イオンビーム加工により先端の直径約10 μm以外すべてをシールドした導電性プローブの試作に成功した。また、試料側への静電シールドの設置により、導電性プローブ顕微鏡システムの寄生容量を95%削減し、電圧電流計測における感度を10倍以上高めることが可能となった。

研究成果の概要(英文)：Fabrication of coaxial conductive probes and suppression of displacement current using electro static shields were investigated for highly sensitive current-voltage measurement at nanoscale using a conductive atomic-force microscopy (CAFM). The coaxial conductive probes with a probe hole of a diameter of around 10 μm were successfully fabricated by focused ion beam processes. In addition, the stray capacitance of CAFM were found to be reduced up to 95% by using the electro static shields. This result indicates that the sensitivity of current-voltage measurement of CAFM can be improved 10 times using the electro static shields.

研究分野：プローブ顕微鏡

キーワード：導電性プローブ顕微鏡

### 1. 研究開始当初の背景

導電性プローブ顕微鏡は、ナノスケールでの表面形状と電流分布の同時測定が可能であり、また任意の局所領域で電圧電流測定を行うことができるため、近年では様々な材料(半導体・誘電体・有機材料・生体試料)のナノスケールでの電気物性評価に使用されており威力を発揮している。一般的に、導電性プローブ顕微鏡は、金属薄膜を蒸着したプローブと高感度電流アンプを用いている。現在商用で最も高感度なシステムで電流検出限界はカタログ値で 40 fA 程度であるが、周辺環境からくるノイズ等の影響で、実使用上では 100 fA 程度にしか到達しない。ナノスケールでの電圧電流測定におけるコンタクト電極は試料に接触しているプローブ先端となるため、電流検出の下限であってもその電流密度は 0.5 mA/cm<sup>2</sup> (プローブ接触面を直径 100 nm の円、電流検出限界 40 fA と仮定)に到達する。これは、導電性プローブを用いた局所電圧電流計測では、非常に高い電流密度範囲(数十 mA/cm<sup>2</sup> ~ 数 mA/cm<sup>2</sup>)しか計測できないことを意味しており、通常のマクロスコピックな電圧電流測定での測定電流密度範囲とはかけ離れている。そのため、ナノスケールでの電子伝導特性の評価や、ナノスケールとマクロスケールでの電圧電流計測を比較して議論することが困難となっている。更に、この高電流密度のために試料によっては測定中に損傷を受けたり変性してしまう。

### 2. 研究の目的

現在商用で利用可能な最も高感度な微小電流計の電流計測の下限はカタログ値で 0.4 fA 以下であり、現在の導電性プローブ顕微鏡の電流検出限界の 100 倍以上の検出感度である。導電性プローブ顕微鏡と高感度な微小電流計を組み合わせたシステムの構築により、電流検出感度を 100 倍以上高めたナノスケールでの局所電圧電流計測技術の確立を目指す。このような微小電流領域では、電流検出感度に外部からの音響及び電磁ノイズや、導電性プローブの持つ寄生容量が非常に強い影響を与える。本研究では、導電性プローブの寄生容量が検出電流に与える影響を明らかにし、同軸構造の導電性プローブを作製することで、寄生容量の低減化を試みる。

導電性プローブ顕微鏡において 0.4 fA 以下の電流検出が実現可能となれば、高電流密度による試料の損傷や変性を抑制し、ナノスケールでの電子伝導機構の解析が可能となる。また、ナノスケールとマクロスケールでの電圧電流特性を比較して議論することが可能となると考えられる。このような、ナノスケールでの低電流密度領域の電気特性の評価は、分子エレクトロニクスをはじめ、多種多様なナノマテリアルのナノスケールでの新しい電子物性の発掘への強力なツールとなると期待される。

### 3. 研究の方法

本研究の最終目標は、商用の導電性プローブ顕微鏡と、商用の高感度微小電流計を用いて、電流検出感度を従来のシステムより 100 倍以上高めた導電性プローブ顕微鏡システムを構築することにある。この最終目標は一見すると斬新性やチャレンジ性は皆無であると思えるが、目標の電流検出感度が 0.4 fA 以下となると目標達成は非常に困難であり、途端にチャレンジ性のある試みとなる。この電流レベルになると、外部からの音響及び電磁ノイズは当然として、システム本体から発生する電磁ノイズや、測定系の持つ寄生容量も電流検出に影響を与えるようになる。ここで今、計測値として得られる電流( $I_{total}$ )を、実際に計測したい試料に流れる電流( $I_{sample}$ )と各種要因から発生する電流の和と考えると

$$I_{total} = I_{sample} + I_{noise} + I_{disp} + I_{offset} \quad (1)$$

と表すことができる。 $I_{noise}$  は外部及びシステムからの音響・電磁ノイズ成分であり、外部からの音響・電磁ノイズはシステム全体を金属のシールドで覆うことで比較的容易に削減可能である。 $I_{offset}$  は電流計測器の漏れ電流(ここでは 0.4 fA)。測定電流に最も影響を与えるのは、システムの持つ寄生容量と電圧掃引速度に依存して流れる変位電流成分  $I_{disp}$  である。変位電流成分は

$$I_{disp} = (C_{sample} + C_{par})dV/dt \quad (2)$$

と表すことができる。 $C_{sample}$  は測定試料の容量、 $C_{par}$  はシステム全体の寄生容量である。典型的な走査プローブ顕微鏡の  $C_{par}$  は 0.1~1 pF 程度であり、電圧掃引速度を 1 V/s とすると変位電流はそれだけで 0.1~1 pA も流れることになる。このことから変位電流の抑制が超高感度微小電流測定において重要かが理解できる。(2)式から変位電流成分を抑制するためには電圧掃引速度を遅くするか、システム全体の寄生容量を減少させるかの 2 通りしかない。寄生容量から発生する変位電流を電圧掃引速度によって 0.4 fA 以下に抑制しようとする、電圧掃引速度は 0.4 ~ 4 mV/s と非常に遅くなる。電圧掃引速度を遅くすると試料への電圧印加時間が長く、負荷がかかり試料のブレイクダウンや変性を誘発する。試料の損傷を防ぐ適切な電圧掃引速度と高感度電流検出の両立のためにはシステム全体の寄生容量の低減化が重要となってくる。システム全体の寄生容量の中で大きな成分かつ低減可能な成分は導電性プローブとプローブホルダの寄生容量である。変位電流抑制のための本研究の基本的なアイデアは次の 2 つである。

ナノ加工技術を用いて同軸構造の導電性プローブの作製を行い寄生容量の低減化を図る。

商用の導電性プローブに FIB を用いた局所加工を用いることによって同軸構造の導電性プローブに改良し、寄生容量とノイズの低減を図る。

測定試料側に静電シールドを設置し、プローブホルダ周辺からの寄生容量の影響を削減する。

プローブだけでなくプローブを固定しているホルダなど、計測試料と近接している部分に発生する寄生容量も大きく影響する。プローブホルダ周りの寄生容量によって誘起される変位電流の抑制のために、試料側に静電シールドを設置する。

以下に具体的な実験方法について説明する。

#### (1) 寄生容量の評価

標準試料には 1cm 角 300nm 熱酸化膜付き n-Si 基板を用いる(試料の面内均一性が良好かつ試料自体の持つ容量を定量化しやすい為)。測定箇所は試料中心位置とする(測定位置による寄生容量の変化の影響を抑えるため)。電圧掃引速度を変化させながら往復の電圧電流特性(0 V から -10V と -10 V から 0 V までの電圧電流特性)を計測する。この時、寄生容量由来の変位電流が計測されるため、往復の電圧電流特性において正負反対の電流が検出される。この正負の電流の差から変位電流を求めることができる。更に、掃引速度を横軸、変位電流を縦軸にプロットし、得られたグラフの傾きを計算することで寄生容量を定量的に求めることができる。

#### (2) 同軸構造導電性プローブの試作

図 1 に作成プロセスの概要を示す。商用の Pt/Ir コート導電性 AFM プローブに、プラズマ CVD を用いて 1 $\mu$ m の酸化膜を堆積させた。その後、RF スパッタ装置を用いて、酸化膜上に Ti (10 nm)/Au(150 nm)を堆積し積層構造を作成した。プローブ先端部の Ti/Au 層を FIB を用いたスパッタにより除去し、その後 BHF ウエットエッチングによりプローブ先端の酸化膜を除去することで、プローブホルの作成を行った。この作製プロセスでは FIB でのホール作製の際の直径を変えることによって容易にプローブホルの直径を制御することが可能であるため、同軸プローブ構造の最適化を行う際の試作プロセスに適している。

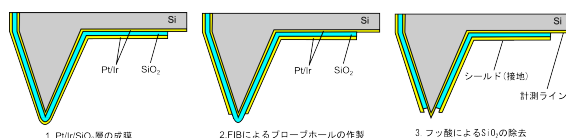


図 1：同軸構造導電性プローブの作成プロセス

#### (3) 静電シールド設置による変位電流の抑制

静電シールドには、4 インチの 300nm 熱酸化膜付 n-Si ウェハを半分に割ったものを使用した。これに対して RF スパッタリングによって Cr/Au をそれぞれ 5nm/30nm 蒸着し、端にアース線を取り付けた。アース線は装置筐体に落とし、静電シールドは試料近傍にテープで固定した。図 2 に実際に静電シールドを設置した測定系を写真で示す。

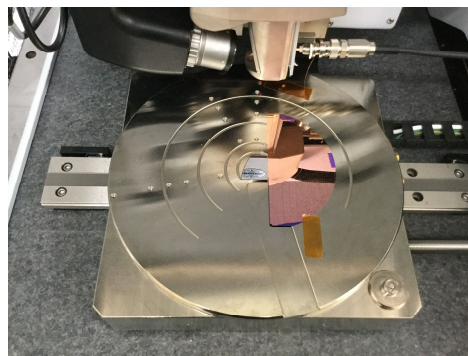


図 2：静電シールド設置の様子

### 4. 研究成果

#### (1) 同軸構造導電性プローブの試作

図 3 に試作したシールド付き導電性プローブの SEM 写真を示す。導電性プローブ先端部分のみ露出させ、その他の部分をシールドした導電性プローブを試作することが出来た。

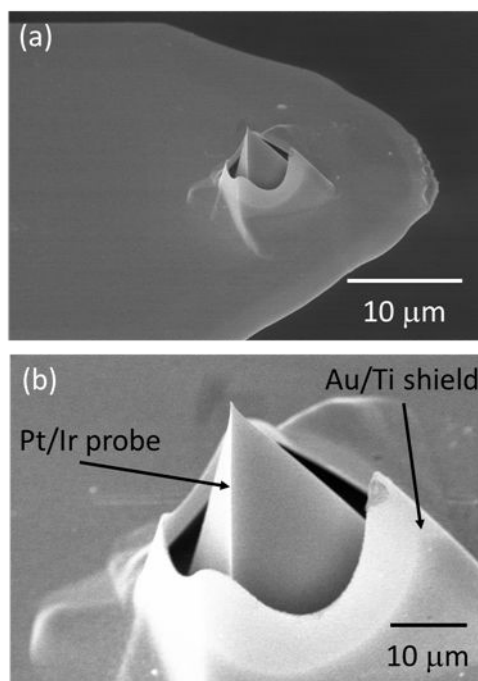


図 3：(a) 試作した同軸構造導電性プローブの SEM 写真 (b) 先端部分の拡大 SEM 写真

#### (2) FEM (Finite Element Method) シミュレーションによる同軸構造プローブ先端の電場分布の評価

図 4 に FEM シミュレーションによる同軸構

造の有無によるプローブ先端での電解分布を示す。シールド電極にバイアスを印可することによって、プローブ直下での電解の広がりを抑制できることが分かった。これはシールド電極の静電レンズ作用により、電流計測の空間分解能を向上できることを示唆している。

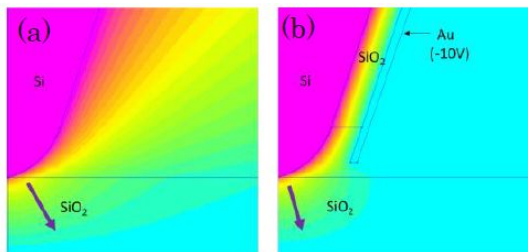


図4：導電性プローブ先端の電解分布の FEM シミュレーション (a) 静電シールド無し (b) 静電シールド有

### (3) 同軸構造導電性プローブの寄生容量評価

作製した同軸構造プローブの変位電流の電圧掃引速度依存性と寄生容量を計測したところ寄生容量が 900 fA であり、従来のプローブと有意な差は見られず変位電流の抑制はできなかった。これは、作製した同軸構造プローブとプローブホルダ・電流アンプ間の配線構造で寄生容量が増大したためだと考えられる。

### (4) 静電シールドによる変位電流抑制効果の評価

図5に静電シールドの有無による、変位電流の電圧掃引速度依存性を示す。静電シールドの設置により変位電流の大幅な抑制が可能となり、寄生容量を 95% 削減し、変位電流を 1/10 以下に抑制できることが分かった。この結果は静電シールドの設置により導電性プローブ顕微鏡におけるナノスケールでの電圧電流計測の感度を 10 倍以上高めることが可能であること示唆しており、電圧掃引速度 0.1 V/s において、電流検出限界 3.7 fA を達成することになる。

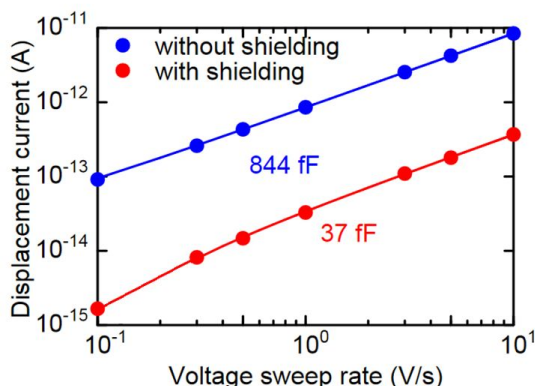


図5：変位電流の電圧掃引速度依存性。

図6に静電シールドの有無による、導電性プローブ顕微鏡で計測した 5 nm 熱酸化膜のリーク電流特性を示す。静電シールドの設置により、同一の電圧掃引速度において、試料を流れるトンネル電流を計測できる範囲が、電圧で 1 V、電流で 1 桁以上広がったことが分かる。

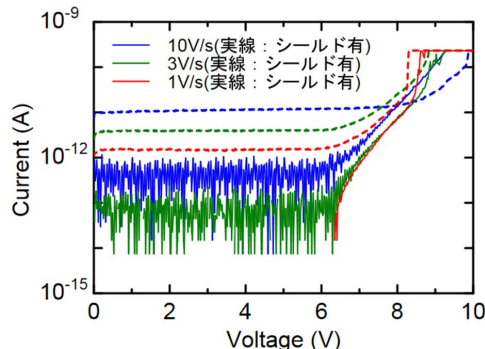


図6：静電シールドの有無による、導電性プローブ顕微鏡による局所電圧電流特性評価の比較（計測試料：5 nm 熱酸化膜付き Si 基板）

上記の結果から、導電性プローブ顕微鏡における変位電流の発生要因は、プローブホルダ・試料間に発生する寄生容量であることが分かった。また、プローブホルダ・試料間の寄生容量から発生する変位電流は、静電シールドの設置により容易に抑制可能であることが分かった。更に、静電シールドの設置により、従来の導電性プローブ顕微鏡の感度を 10 倍以上高めることができた。

## 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 0 件)

〔学会発表〕(計 4 件)

宮下晃、村上勝久、藤田淳一、同軸構造導電性 AFM プローブの作成、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 19 日、北海道大学札幌キャンパス

猪狩智彦、村上勝久、藤田淳一、AFM を用いたナノスケールでのグラフェンの弾性力評価、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月 13 日、東海大学湘南キャンパス

Tomohiko Igari, Katsuhisa Murakami, and Jun-ichi Fujita, Nanoscale evaluation of elastic force of graphene by atomic force microscopy, The Sixteenth International Conference on the Science and Application of Nanotubes, June 29 - July 3, 2015, Nagoya University, Nagoya, Japan.

Katsuhisa Murakami, Tomohiko Igari, and Jun-ichi Fujita, Nanoscale characterization of the elastic force of graphene by using force curve mapping with an atomic force microscope, Recent Progress in Graphene Research, Oct 25 -29, Melbourne. Australia.

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

村上 勝久 (MURAKAMI Katsuhisa)

筑波大学・数理物質系・助教

研究者番号：20403123