科学研究費補助金研究成果報告書

平成 23 年 5 月 11 日現在

機関番号:14401 研究種目:基盤研究(A) 研究期間:2007~2010 課題番号:19206008 研究課題名(和文) ナノビーム誘起堆積プロセスによる可干渉電子源の創製 研究課題名(英文) Fabrication of Electron Source with Electron-Wave Interference by Nano Beam Induced Deposition Process 研究代表者 高井 幹夫(TAKAI MIKIO) 大阪大学・極限量子科学研究センター・教授 研究者番号:90142306

研究成果の概要(和文):集束イオンや電子ビームを用いたプラチナ局所堆積技術により、2~ 3ナノメートル間隙を持った電界放出電子源のエミッタ作製技術を開発し、放出される電子に より干渉パターンが現れる条件を明らかにした。さらに、ゲート構造付きの電子源構造を開発 し、低いゲート電圧で干渉パターンを制御できることを明らかにした。また、堆積プラチナ中 の伝導電子のコヒーレント長と放出電子の可干渉条件を明らかにした。

研究成果の概要 (英文): Nanobeam deposition processes using focused ion or electron beams for Pt field emitters with nanometer adjacent electron emission sites have been developed to fabricate field emitters which emit coherent electrons with electron interference fringe patterns. Gated field emitters have further been developed to control fringe patterns at the lower voltages. The coherent length of conducting electrons in deposited Pt layers is also obtained and compared with the distance of adjacent electron emission sites in the Pt field emitter.

交付決定額

			(金額単位:円)
	直接経費	間接経費	合 計
2007年度	18,200,000	5,460,000	23,660,000
2008年度	10,800,000	3,240,000	14,040,000
2009年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2010年度	2,900,000	870,000	3,770,000
年度			
総計	34,800,000	10,440,000	45,240,000

研究分野:ビーム応用

科研費の分科・細目:応用物理学・工学基礎・薄膜・表面界面物性 キーワード:電子波干渉、真空ナノエレクトロニクス、電界電子放出電子源、電子のコヒーレ ント長、集束イオンビーム、電子ビーム、ナノビーム、ビーム誘起堆積

1. 研究開始当初の背景

半導体集積回路素子の集積および動作限 界が十数年後に到来すると予測される状況 で、新しい動作原理のデバイスを開発し、半 導体素子の欠点を補完もしくは凌駕する新 しいナノデバイスの出現が待たれていた。本 研究で創製する可干渉電子源は、電子波の干 渉という新しい原理で動作する真空ナノエ レクトロニクスデバイスである。我々のグル ープは、ビーム誘起プロセスを用いて、マス クレスで作成した電界放出電子源のエミッ ション特性の評価を行ってきた。これまで、 エミッタ形状の最適化や、ゲートリーク電流 の低減などに取り組んできた。また、このプ ロセスで、ナノ間隙エミッタの作成に成功し ている。さらに研究開始の少し前に、ナノ間 隙エミッタから放射された電子が室温で干 渉パターンを示すことを確認した。従来は可

干渉電子ビームを用いた実験は透過型電子 顕微鏡とバイプリズムを利用したものしか なかったが、2000~2002年頃カーボンナノチ ューブの五員環から放出される電子が低温 で干渉することが報告されている。しかし、 人工的に設計作製したエミッタからコヒー レント電子線を得ているのは、我々のグルー プの報告のみであった。さらに、我々のグル ープでは、ビーム誘起堆積ナノ構造の電気伝 導を測定し、低温でのコヒーレント伝導や比 較的高温での単一電子伝導などを報告して いる。本研究ではこれらの成果を発展させて、 ビーム誘起堆積物質中の電子のコヒーレン スと真空中に電界放出された電子のコヒー レンスの関係を明らかにし、コヒーレンスの 良い電子線を安定的に得る条件を見出し、可 干渉電子源の開発を始めた。

2. 研究の目的

電子およびイオンビームをその限界まで 集束し、局所的な物理・化学反応を用いる「ナ ノビーム誘起堆積プロセス」を開発し、この 技術によりコヒーレント電子線を放出でき る電界放出電子源を創製することを目的と した。固体中では様々な散乱によって電子の コヒーレンスが失われるため、コヒーレント 電子線を得るには、ナノメートルオーダーま で接近した2つの放出サイトをもつ電子源 を実現する必要がある。このようなナノ間隙 エミッタの実現は、従来の半導体プロセスで は不可能であり、マスクレスナノビームプロ セスによる電子源のナノメートル精度の加 工が必要となる。このため、ナノメートル制 御された、エッチング・堆積・ドーピングの 低損失プロセスを開発する。プロセスを低損 失にするためには、電子・イオンビームの加 速エネルギーも低エネルギー域を利用し、加 工界面に欠陥を残さないナノプロセスを開 発し、この技術により可干渉電子源を創製す る。

研究の方法

ナノビーム誘起堆積プロセスで作製 した固体中の電子のコヒーレンスと、真 空中に電界放出された電子のコヒーレ ンスの関係を明らかにし、コヒーレンス の良い電子線を放出する可干渉電子源 を実現する条件を以下の方法で明らか にし、可干渉電子源の創製を行った。 (1)低エネルギー低損傷ナノビームプロセス の完成

15keVのエネルギーの電子ビーム (EB) また は集束イオンビーム (FIB) を有機Ptガス雰囲 気中でタングステンチップ上またはシリコン 基板上に照射することによりエミッタ部を形 成する方法を用いた。このエミッタからの電 子放出により、エミッションパターンを観測 した。 (2)ビーム誘起堆積技術で作成されたエミッタのナノメートル3次元分析

イオンナノプローブによりEB堆積させたPt 層の3次元分析を行い、Pt分布を3次元可視化 した。TEM観察を併用し、Ptナノ結晶粒径制御 を行った。

(3)ビーム誘起堆積で作成されたエミッタの 電気伝導特性の評価

堆積Pt層の電気伝導度と電子のコヒーレン シーを低温計測し、電子のコヒーレンス長を 求めた。

(4)エミッションパターン評価装置の開発 極低温から室温までの温度で電子放出計測 が可能で、フィールドエミッションマイクロ スコープ(FEM)とフィールドイオンマイクロ スコープ(FIM)機能を持ち、電子のナノ間隙 放出サイトを特定可能な装置を作製した。

(5) ナノ間隙電子源から放出される電子線の スクリーン上でのパターン観察

エミッタを7Kまで冷却でき、その時の FEM・FIMエミッションパターンの評価を行う 装置を用いて、電子放出サイトの特定とプロ セス条件や先端形状および電子放出サイト が、コヒーレンスに与える影響を明らかにし た。

(6) ゲート付き可干渉電子源の作成

FIBによるゲート孔加工およびEBを用いた ナノビーム誘起堆積加工プロセスにより、ゲ ート付きのナノ間隙放出サイトを持つ電子 源を作成した。

4. 研究成果

(1)低エネルギー低損傷ナノビームプロセス の完成

15keVのエネルギーのEBまたはFIBを有機Pt ガス雰囲気中でタングステンチップ上に照射 することによりエミッタ部を形成後、FIB堆積 では後処理無しで、EB堆積では酸素プラズマ アッシングまたはアニール処理によりナノ間 隙エミッタを作成する技術を完成した。この エミッタからの電子放出により、干渉縞のあ るエミッションパターンを観測した。

(2)ビーム誘起堆積技術で作成されたエミッ タのナノメートル3次元分析

イオンナノプローブにより電子ビーム堆積 させたPt層の3次元分析を行い、Pt分布を3次 元可視化した。TEM観察を併用し、Ptナノ結晶 粒径制御をアニールプロセスにより行った。

(3)ビーム誘起堆積で作成されたエミッタの 電気伝導特性の評価 堆積Pt層の電気伝導度と電子のコヒーレン シーを低温計測し、400℃以上のアニールによ り、抵抗が3桁下がることと、電子のコヒーレ ンス長が4~40 nm (100 K~0.1 K)となること を明らかにした。

(4) エミッションパターン評価装置の開発 極低温から室温までの温度で電子放出計測 が可能で、フィールドエミッションマイクロ スコープ(FEM)とフィールドイオンマイクロ スコープ(FIM)機能を持ち、電子のナノ間隙 放出サイトを特定可能な装置(図 1)を完成し た。



図1 FEM/FIMエミッションパターン評価装置

(5) ナノ間隙電子源から放出される電子線の スクリーン上でのパターン観察

前記の開発装置を用いて、電子放出サイト の特定とプロセス条件や先端形状および電 子放出サイトが、コヒーレンスに与える影響 を明らかにした。EB 堆積 Pt エミッタでは、 アニールまたは酸素プラズマアッシング処 理後に室温で放出電子の干渉パターンが現 れることを明らかにした(図 2)。また、FIB 堆積では、後処理無しで195 K以下の温度で 放出電子の干渉パターンが現れることを明 らかにした(図 3)。 いずれの場合も、電子 放出サイトが 2~3 nm 以内であることを FEM/FIM 計測により明らかにした(図 4)。



図 2 EB 堆積によるエミッタからの 電子波干渉パターン(FEM 像 室温)



図 3 FIB 堆積によるエミッタからの電 子波干渉パターン (FEM 像 195 K)





図 4 FIB 堆積によるエミッタからの 電子波干渉パターン (FEM 像 7 K) と FIM 像 (40 K)。 FIM 像の AB および CD の間 隔がそれぞれ 1.2 nm で BD および EF の 間隔がそれぞれ 4.5 nm となり、AB およ び CD 間で干渉パターンが発生している。

さらに、得られた固体中の電子のコヒーレンス長と、放出された電子のコヒーレンスの関係を明らかにした。

(6) ゲート付き可干渉電子源の作成

FIBおよびEBを用いたナノビーム誘起堆積 加工プロセスにより、ゲート付きのナノ間隙 放出サイトを持つ電子源(図 5)を作成するこ とが出来、低電圧のゲート電圧により干渉電 子放出パターンの制御が可能となった。



図5 ゲート付き可干渉電子源

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7件)

- <u>Fujio Wakaya</u>, Kunio Takamoto, Tsuyoshi Teraoka, Katsuhisa Murakami, <u>Satoshi Abo</u>, and <u>Mikio Takai</u>,"Electron Transport Properties of Pt Nanoarch Fabricated by Electron Beam Induced Deposition", Jpn. J. Appl. Phys. 査読有, 2011, in print.
- ② <u>Satoshi Abo</u>, Shunya Kumano, Takayuki Azuma, Ryota Sugimoto, Katsuhisa Murakami, <u>Fujio Wakaya</u> and <u>Mikio</u> <u>Takai</u>,"Three dimensional measurement of nano structures by single event TOF-RBS with nuclear nano probe", Nucl. Instr. Meth., 査読有, B, 2011, in press
- ③ K. Murakami, N. Matsubara, S. Ichikawa, <u>F. Wakaya</u>, and <u>M. Takai</u>, "In situ transmission electron microscopy observation of electron-beam-deposited Pt field emitter during field emission and field evaporation", J. Vac. Sci. Technol. 査読有**B28** (2010) C2C13 C2C15.
- ④ K. Murakami, T. Matsuo, <u>F. Wakaya</u>, and <u>M. Takai</u>, "Electron wave interference induced by electrons emitted from Pt field emitter fabricated by focused-ion-beam-induced deposition", J. Vac. Sci. Technol. 査読有 B28, (2010) C2A9 C2A12.
- (5) Katsuhisa Murakami, Naoki Matsubara, Satoshi Ichikawa, Toshiya Kisa, Takahito Nakayama, Kunio Takamoto, <u>Fujio Wakaya</u>,

<u>Mikio Takai</u>, Silke Petersen, Brigitte Amon, and Heiner Ryssel, "Transmission Electron Microscopy Observation of Pt Pillar Fabricated by Electron-Beam-Induced Deposition", Jpn J. of Appl. Phys. 査読有**48** (2009) 06FF12-1 – 06FF12-4.

- ⑥ K. Murakami, S. Nishihara, N. Matsubara, S. Ichikawa, <u>F. Wakaya</u>, and <u>M. Takai</u>, "Superposition of Fringelike Electron Emission Pattern from Radical-Oxygen-Gas Exposed Pt Field Emitter Fabricated by Electron-Beam-Induced Deposition", J. Vac. Sci. Technol. 査読有, B 27, (2009) 721 724.
- ⑦ K. Murakami, <u>F. Wakaya</u>, and <u>M. Takai</u>, "Observation of Fringe-Like Electron-Emission Pattern in Field Emission from Pt Field Emitter Fabricated by Electron-Beam-Induced Deposition", Journal of Vacuum Science & Technology, 査読有, B25, (4), (2007) 1310 - 1314.

〔学会発表〕(計 10 件)

- Fujio Wakaya, Kunio (1)Takamoto, Tsuyoshi Teraoka, Katsuhisa Murakami, Satoshi Abo, and Mikio Takai, "Electron Transport Properties of Pt Nanoarch Fabricated by Electron Beam Induced Deposition, The 23^{rd} International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2010), November 9 - 12, 2010, Kokura, Japan.
- (2)K. Murakami, T. Kisa, T Matsuo, S. Ichikawa, F. Wakaya, and M. Takai, "Electron Emission Properties of Coherent Field Emitter for Electron Wave Interference". The 23rd International Conference Vacuum Nanoelectronics (IVNC2010), July 25 - 30, 2010, Palo Alto, USA.
- (3) Satoshi Abo, Shunya Kumano, Takayuki Azuma, Ryota Sugimoto, Kohei Koresawa, Katsuhisa Murakami, Fujio "Three Wakaya, and Mikio Takai, dimensional measurement of nanostructures by single event TOF-RBS with nuclear nanoprobem", The 12nd International Conference on Nuclear Microprobe Technology and Applications (ICNMTA2010), July 25 -30, 2010, Dresden, Germany.
- ④ K. Murakami, T. Matsuo, <u>F. Wakaya</u>, and <u>M. Takai</u>, "Observation of electron wave interference pattern from Pt field emitter fabricated by beam-induced deposition", *The 2nd Japan-Korea Vacuum Nanoelectronics*

Workshop, March 3 – 4, 2010, Hamamatsu, Japan.

- K. Murakami, T. Matsuo, F. Wakaya, and M. (5)Takai, "Observation of electron wave interference pattern and electron-emission site of Pt nanocrystalline field emitter by field-emission microscopy and field-ion 7^{th} microscopy", The International Symposium Level Atomic on Characterizations for New Materials and Devices '09, December 6 - 11, 2009, Hawaii, USA.
- (6) K. Murakami, T. Matsuo, <u>F. Wakaya, and M. Takai</u>, "Electron-wave interference induced by electrons emitted from Pt field emitter fabricated by focused-ion-beam-induced deposition", *The 22nd International Vacuum Nanoelectronics Conference 2009* (*IVNC2009*), July 20-24, 2009, Hamamatsu, Japan.
- K. Murakami, N. Matsubara, S. Ichikawa, T. Nakayama, K. Takamoto <u>F. Wakaya, M.</u> <u>Takai</u>, S. Petersen, and H. Ryssel, "Transmission-electron-microscope observation of Pt pillar fabricated by electron-beam-induced deposition", *The* 21st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC08), October 27 – 30, 2008, Fukuoka, Japan.
- (8) <u>F. Wakaya</u>, T. Nakayama, K. Takamoto, T. Takeuchi, N. Matsubara, K. Murakami, S. Ichikawa, <u>S. Abo, M. Takai</u>, "Electron Coherence Length in Electron-Beam-Deposited Pt", *The 34th International Conference on Micro and Nanoengineering 2008 (MNE2008)*, September 15 -18, 2008, Athens, Greece.
- (9) K. Murakami, S. Nishihara, N. Matsubara, <u>S. Abo, F. Wakaya, and M. Takai,</u> "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 (IVNC2008), July 13 - 17, 2008, Wroclaw, Poland.
- 1 K. Murakami, S. Abe, S. Nishihara, <u>S. Abo, F. Wakaya</u>, and <u>M. Takai</u>, "Effect of radical oxygen gas exposure on Pt field emitter fabricated by electron-beam induced deposition", *The 20th International Vacuum Nanoelectronics Conference (IVNC2007)*, July 8 12, 2007, Chicago, Illinois, USA.
- 〔その他〕 http://www.nano.cqst.osaka-u.ac.jp

- 6. 研究組織
- (1)研究代表者

高井 幹夫(TAKAI MIKIO)
大阪大学・極限量子科学研究センター・教授
研究者番号:90142306

(2)研究分担者

 若家 冨士男(WAKAYA FUJIO)
大阪大学・極限量子科学研究センター・准 教授
研究者番号:60240454

阿保 智(ABO SATOSHI)
大阪大学・極限量子科学研究センター・助教
研究者番号:60379310