The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	電界放射顕微鏡による電子ビーム誘起堆積Pt冷陰極の評価
Author(s)	村上, 勝久; 若家, 冨士男; 高井, 幹夫
Citation	大阪大学低温センターだより. 2007, 139, p. 2-8
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/5772
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

研究ノート

電界放射顕微鏡による
電子ビーム誘起堆積Pt冷陰極の評価

極限量子科学研究センター　村上　勝久，若家冨士男，
高井　幹夫（内線6693）

１．はじめに

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顕微鏡が注目を集めている[1]。この技術を用いることで、**AB**効果の検証実験[2]や**CMOS**トランジスタ断面の不純物の二次元分布測定[3]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気的機能を直視することが可能になってきている。一般的に可干渉電子波は一つの電子線を電子線バイプリズム[4]で分割することで作られている。電子線バイプリズムのように一本の電子線を分割して干渉させるのではなく、異なる電子放出サイトから放出した電子線での干渉効果ではカーボンナノチューブからの電子放出でこの可能性を示唆する興味深い報告がされている[5]。しかしながら、人工的に作製した二つの異なる電子放出サイトからの電子波干渉に関する報告は未だされていない。

我々の研究グループではこれまで電子ビーム誘起堆積法*を用いた微小電子源の開発を行ってきた[6]。電子ビーム誘起堆積法では電子ビームの照射パターンを作製することによって、局所的に任意の三次元ナノ構造を容易に作製することが可能である。この利点から、現在我々の研究グループでは電子ビーム誘起堆積法を用いて人工的に作製した隣接する二点の電子放出サイトから放出された電子波の干渉効果について研究を行っており、電界放射顕微鏡を用いることによって隣接する二点からの電子放出に起因すると考えられる干渉縞の観測に成功したので紹介する。

２．電界放射顕微鏡

電界放射顕微鏡（**Field Emission Microscope**（**FEM**））の基本的な原理について簡単に説明する[7]。**FEM**は先端を鋭く尖らせた金属の針状試料に高電圧を印加することにより試料表面で生ずる極めて高い電界によって電界放出した電子をスクリーンに投影する投影型顕微鏡である。**FEM**

---

*この印の付いている語は、後に「用語説明」があります。

では、電子放射源からの幾何学的な電子放射パターンを、直接スクリーン上で観察する。針状試料を陽極である蛍光スクリーンと対向させて設置し、陽極に正の電圧を印加（または、針状試料に負の電圧を印加）すると、電界放射により針状試料から真空中に電子が放射される。針状試料から放射された電子は、針状試料先端付近の等電位面に垂直の方向に加速され、ほぼ放射状に広がり蛍光スクリーンに衝突してスクリーンを光らせる。これによって、蛍光スクリーンに針状試料先端の拡大像が電界放出電子の分布として得られる。針状試料先端を半球と仮定した際の曲率半径を**r**、試料と蛍光スクリーン間の距離を**d**とすると、拡大率は**d/r**倍となることが知られている。このように、**FEM**では針状試料先端から電界放出した電子の分布を拡大して観察することが可能である。本研究で用いた**FEM**の概略図を図 **1**(**a**)、**FEM**試料の光学写真を図 **1**(**b**) に示す。**FEM**にはターボ分子ポンプとイオンポンプによって排気された超高真空チャンバーを用いた。最高到達真空度は2×10^{-8} **Pa**である。試料ホルダーには水導入機を加工した銅の液体窒素溜めの上に設置されたサファイア製のプレートを用いた。蛍光スクリーンには、ガラス基板上に**Indium Tin Oxide**（**ITO**）を蒸着した基板に蛍光体を塗布し、更に蛍光体の焼きつきを防ぐために水ガラスをスピンコートしたものを使用し、試料と蛍光スクリーン間の距離が**10 mm**となるように対向させて設置した。本研究で評価した典型的な**Pt**冷陰極の曲率半径は**SEM**像から **5 nm**程度と見積もられる事から、本研究で用いた**FEM**の拡大率は**20**万倍程度であると考えられる。**FEM**パターン測定条件を以下に示す。ベース真空は5×10^{-8} **Pa**程度、測定時のサンプルホルダーの温度は室温および**100 K**。最大印加電圧**10 kV**。電界放出電流が10^{-8}～10^{-5} **A**程度の領域で**FEM**パターンの観察を行った。

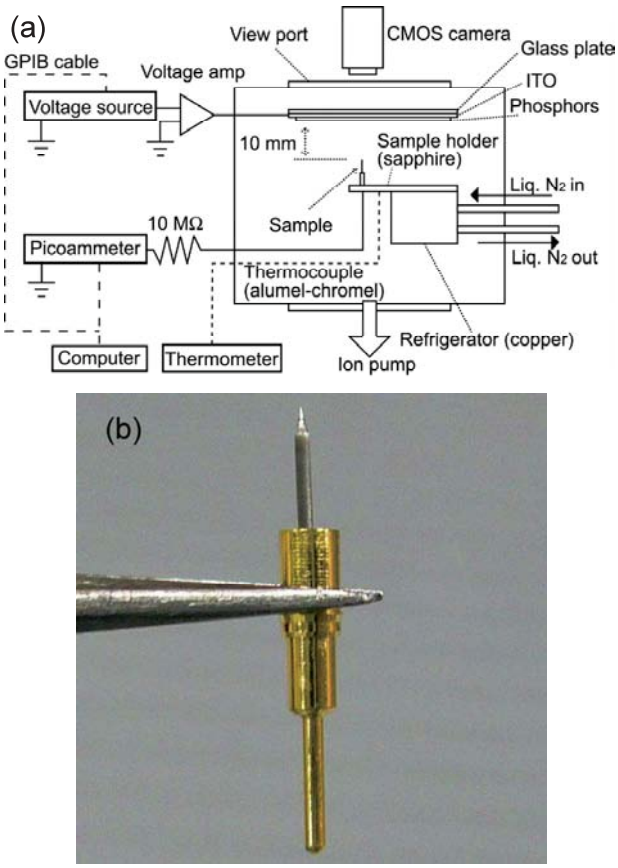

図 **1**　（**a**）**FEM**の概略図。（**b**）**FEM**試料の写真。

3．試料作製プロセス

FEM試料の作製プロセスについて説明する。まず、直径**0.35 mm**の多結晶タングステンワイヤーを**20 mm**程度にカットし、アセトン、イソプロピルアルコール、超純水の順で洗浄を行った。次に、**KOH**水溶液を用いて **5 V**程度の電圧で交流電解研磨を行い先端の曲率半径約**100 nm**程度のベースとなるタングステンエミッタを作製した。次に、タングステンエミッタの先端に$C_5H_5Pt(CH_3)_3$ガスを用いた電子ビーム誘起堆積法によって**Pt**冷陰極を作製した（図 **2** 参照）。その後、窒素雰囲気**400**

℃で10分間アニール処理を行った。図 3(a), (b) にタングステンエミッタ先端に堆積させたPt冷陰極のアニール前後でのSEM写真を示す。このように、アニール処理をすることによって、Pt冷陰極先端に10 nmの間隙でナノ突起を有するPt冷陰極を作製することができた。アニールをすることにより表面形状が変化し、表面にナノ突起が出来ることがわかる。

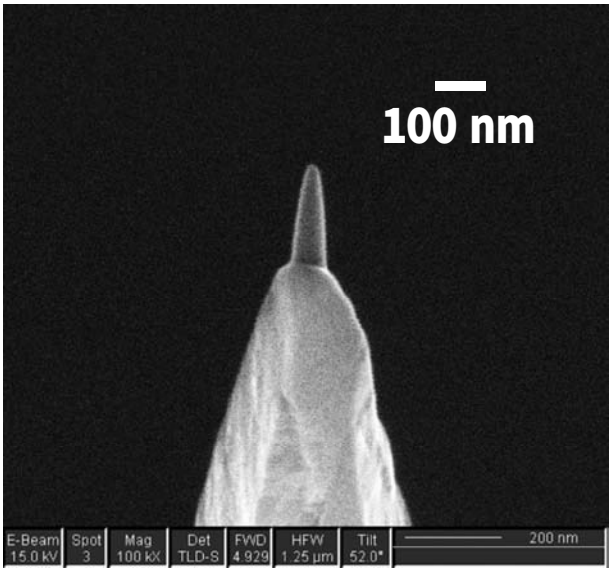

図 2　電子ビーム誘起堆積法によってタングステンエミッタの先端に作製したPt冷陰極のSEM写真。

4．実験結果と考察

図 4(a)～(h) に図 3(b) に示した先端に10 nm間隙でナノ突起を有するPt冷陰極の室温と100 Kでの印加電圧を350～500 Vまで50 Vずつ上昇させた時のFEMパターンを示す。室温、100 K両方で縞状の電子放出パターンを観測した。また両温度で、印加電圧を上げていくと500 Vで 7 本の干渉縞を観測した。また350 V、400 V付近で最も顕著であるが、100 KでのFEMパターンの方が干渉縞のコントラストが高いように見える。これは、冷却により放出電子のコヒーレンスが高くなった可能性が考えられる。また、干渉縞の間隔は、印加電圧を変化させても変化せず約1.0 mm程度であった。これは、カーボンナノチューブ先端からの電子放出による電子波の干渉での議論と一致している。大島ら[8]は、異なる 2 点から放出した電子のスクリーン上での位相差は、単純な平行電場中では 2 点の電子放出サイトでの電子の位相差になることを計算によって求めている。よって、独立した 2 点から放出した電子波による電子波の干渉パターンは、加速電場中ではなくて電子放出サイト近傍で生成されていることになる。そのため、放出電子が電場によって加速されても基本的には電子波の干渉縞の間隔は変化しない。

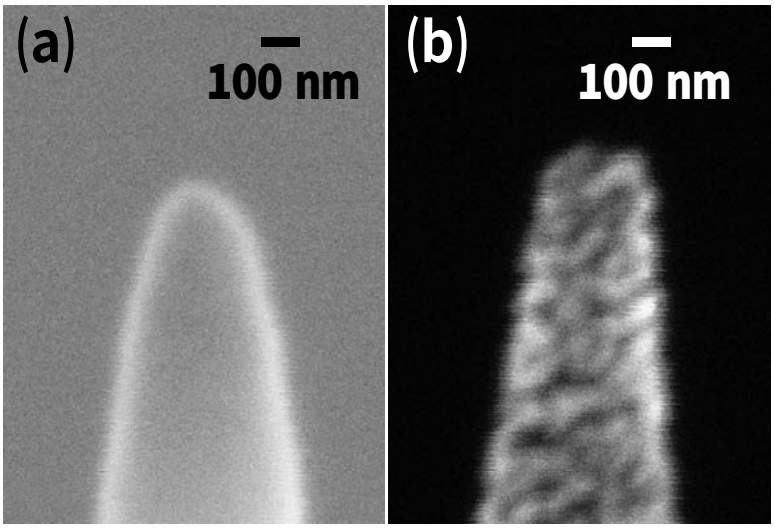

図 3　(a) アニール前のPt冷陰極先端のSEM写真。
(b) アニール後のPt冷陰極のSEM写真。

前述したように、2 点から放出した電子波による電子波の干渉パターンは、電子放出サイト近傍で生じており、加速電場に依存しない。また電界放出の理論では、電子はフェルミ面からトンネル効果により真空中に染み出して来るため、放出電子の持っているエネルギーはフェルミエネルギーとなる。そのため、電子波が干渉した時の電子の波長は陰極中の電子のフェルミ波長であると考え

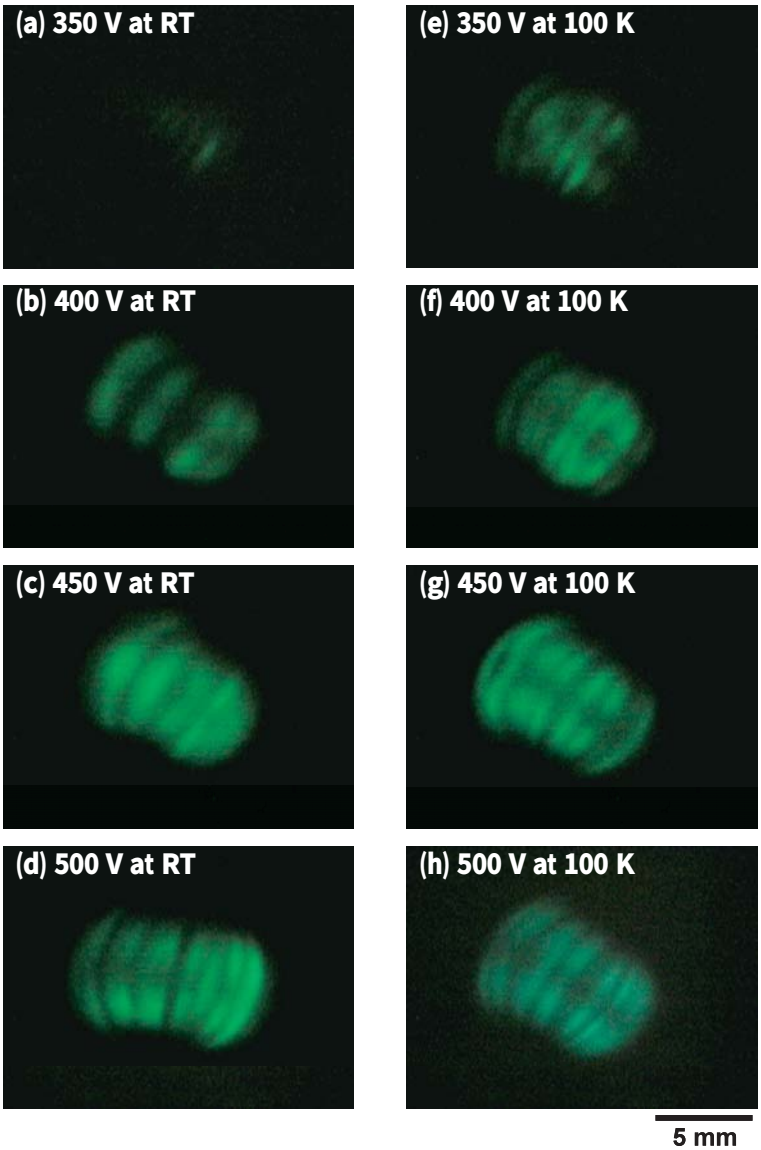

図 4　10 nm間隔のナノ突起を有するPt冷陰極のFEMパターン（a）印加電圧350 V室温で観測（b）印加電圧400 V室温で観測（c）印加電圧450 V室温で観測（d）印加電圧500 V室温で観測（e）印加電圧350 Vサンプルホルダーの温度100 Kで観測（f）印加電圧400 Vサンプルホルダーの温度100 Kで観測（g）印加電圧450 Vサンプルホルダーの温度100 Kで観測（h）印加電圧500 Vサンプルホルダーの温度100 Kで観測。

られる。図 5 にヤングの干渉モデルを示す。図のように、二つのピンホール間の距離をd、ピンホール・スクリーン間の距離をL、干渉縞の間隔をΔxとすると、電子波の波長λは[9]

$$\lambda = \frac{\Delta x d}{L} \tag{1}$$

と表すことが出来る。本研究では、ピンホール・スクリーン間の距離をLは10 mm、Pt冷陰極の間隙間隔dはSEM像から10 nm、干渉縞の間隔は電子放出パターンからΔxは1.0 mmとすると、電子波の波長はλ=1.0 nmとなる。この値は、一般的な金属のフェルミ波長とほぼ同程度であることがわかる。

図 6（a）に二つの正方形の開口を持ったフラウンホーファ回折モデルを示す。開口の一辺の長さをa、一つの開口の中心からもう片方の開口のまでの距離をMaとすると、フラウンホーファ回折に

よる強度分布は[9]

$$I(k_x,k_y)=I_0\left(\frac{\sin(ak_x)}{ak_x}\right)^2\left(\frac{\sin(ak_y)}{ak_y}\right)^2\cos^2\left(\frac{Mak_x}{2}\right) \tag{2}$$

と表すことが出来る。I_0は開口が一つの場合での中心での強度分布、k_x, k_yはそれぞれx、y成分での波数ベクトルである。この時、**Pt**冷陰極の**SEM**写真からM=**10**、a=**1 nm**つまりMa=**10 nm**と仮定すると、図**6**(**b**), (**c**) に示すような強度分布を得る。図**6**(**b**) に示す**3**次元強度分布から、k_x軸方向に**7**本の強度の強い縞と**10**本の強度の弱い縞が得られた。また、図**6**(**c**) に示すように**2**次元強度分布にすると、**7**本の強度の強い縞が得られた。これは**10 nm**間隙の**Pt**冷陰極から得られた**FEM**パターンと比較的良い一致を示すことがわかる。更に、M=**3**〜**15 nm**までの範囲で強度分布を計算したが、Mの値を大きくするにつれて、縞の本数が増加し、縞の間隔が短くなっていくが、実験結果とは良い一致を示さなかった。以上のことから、得られた**FEM**パターンは**10 nm**の間隔で隣接している電子放出サイトから放出した電子の干渉パターンであると強く示唆される。

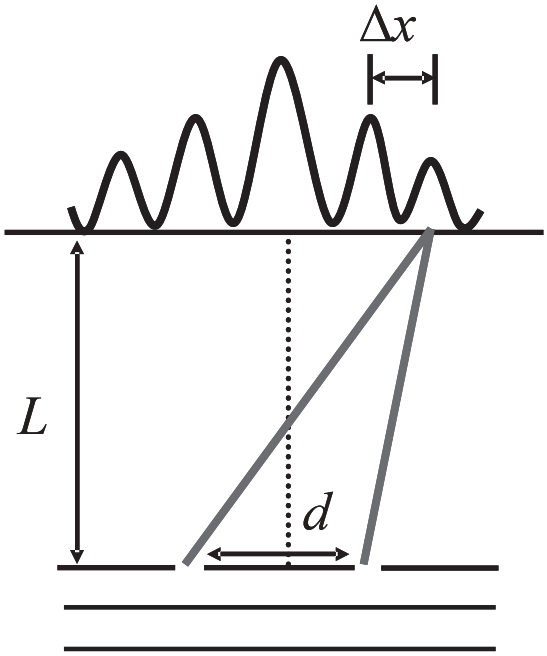

図**5**　ヤングの干渉モデル

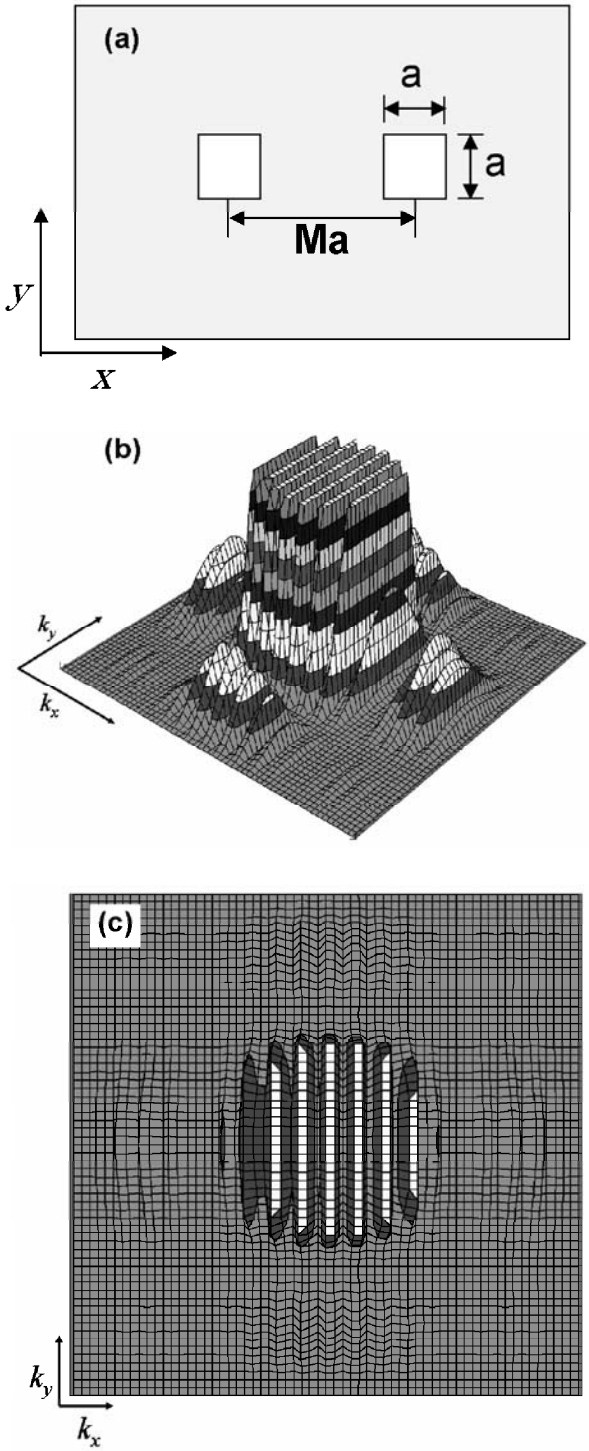

図**6**　(**a**) フラウンホーファ回折モデル。(**b**) フラウンホーファ回折モデルのMa=**10**での三次元強度分布。(**c**) フラウンホーファ回折モデルのMa=**10**での二次元強度分布。

次に、Pt冷陰極の電子の位相コヒーレント長との関係について述べる。我々の研究グループで測定した電子ビームおよび集束イオンビーム（Focused Ion Beam（FIB））誘起堆積Pt細線の電子の位相コヒーレント長は4 Kで15 nm程度であった[10]。FIBで堆積させたPt細線の位相コヒーレント長については我々よりも10倍程度長い値を報告している研究グループも存在する[11]。しかし、本研究では10 nm間隙のPt冷陰極から室温で干渉縞を観測した。これは当初、干渉効果を観測するための条件と考えていた隣接2点の間隔を電子の位相コヒーレント長以下にしなければならないという条件を満たしていない。本研究では隣接するナノ突起の先端のSEM像から2点の電子放出サイトの間隔を推定しているが、一般に電子放出サイトは原子レベルのサイズで議論すべきであるため、実際には二点の電子放出サイト間の距離はより短い可能性がある。フラウンホーファ回折モデルでは、Mの値で干渉縞の本数が決まりaの値で干渉縞の間隔が変化する。本研究では開口の一辺の長さaをSEM像から1 nmとしたが、電子放出サイトが原子サイズであると仮定するとa=0.1 nm程度と考えることもできる。つまりMa=1 nmとなり1 nm間隙から放出した可能性も考えられる。そのため、より詳細に議論するためには電界イオン顕微鏡（Field Ion Microscope（FIM））を用いて電子放出サイトの分布を観測する必要があると考えられる。

5．まとめ

電子ビーム誘起堆積法によって作製したPt冷陰極をアニール処理することによって、Pt冷陰極の先端に10 nm間隔のナノ突起を作製することに成功した。また、FEMにより電子波の干渉縞と考えられる縞状の電子放出パターンを観測した。干渉縞間隔から計算した電子波の波長は1 nmでフェルミ波長と近い値を示すことが分かった。また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。これらの結果から、得られた縞状の電子放出パターンは10 nm間隔で隣接する電子放出サイトから放出された電子波の干渉縞である可能性が高い。しかし、現状では電子放出サイトが10 nm間隔の隣接2点であるかは明らかではないため、今後はFIMを用いて電子放出サイトの分布を観察する予定である。

謝辞

本研究は科学研究費補助金特別研究員奨励費（17・9596）によって行われた。

用語説明

電子ビーム誘起堆積

電子ビーム誘起堆積法とは電子ビームによるビーム励起反応プロセスを用いて有機金属ガスなどを分解し、ナノ構造を作製する技術である。応用例としてはマスクの修正、集積回路のリペア、CNTなどの微細な試料への配線、走査プローブ顕微鏡の探針の作製などが挙げられる。

参考文献

［1］ D. Gabor, Proc. Roy. Soc. London, Ser. A 197, 454-487（1949）.

［2］ A. Tonomura *et al.*, Phys. Rev. Lett. 56, 792-795（1986）.

［3］ W. D. Rau, P. Schwander, F. H. Baumann, W. Höppner, and A Ourmazd, Phys. Rev. Lett. 82, 2614-2617（1999）.

［4］ G. Möllenstedt, and H. Düker, Z. Phys. 145, 377-397（1956）.

［5］ Y. Saito, K. Hata, and T. Murata, Jpn. J. Appl. Phys. 39, L271-L272（2000）.

［6］ K. Murakami, N. Yamasaki, S. Abo, F. Wakaya, and M. Takai, J. Vac. Sci. Technol. B 23, 735-740（2005）.

［7］ R. Gomer, *Field Emission and Field Ion Microscopy*, Harvard University Press,（1961）.

［8］ C. Oshima *et al.*, Phys. Rev. Lett. 88, 038301-1-4（2002）.

［9］ M. Born, and E. Wolf, *Principles of Optics* 7th（expanded）edition.（Cambridge University Press, Cambridge, U.K., 1999）.

［10］ Y. Tsukatani, N. Yamasaki, K. Murakami, F. Wakaya, and M. Takai, Jpn. J. Appl. Phys. 44, 5683-5686（2005）.

［11］ L. Rotkina, J.-F. Lin, and J. P. Bird, Appl. Phys. Lett. 83, 4426-4428（2003）.