

# 博士論文概要

## 論文題目

電子顕微鏡用高輝度単色電子源の研究

Studies of Highly-Bright and  
Monochromatic Electron Sources for  
Electron Microscopy

申請者

大嶋	卓
Takashi	OHSHIMA

2013年 5月

電子顕微鏡、特に低加速の走査型電子顕微鏡 (SEM: Scanning Electron Microscopy)は、試料へのダメージが少なく、かつ入射電子と発生電子の量がつりあう条件があるために帯電し易い絶縁体でも特別な表面処理を施さずに観察可能であり、半導体や生体の分野など、広い分野で有用な物となっている。低加速 SEM の最高分解能を決めるものは電子源であり、特に、輝度が高い事と電子のエネルギー分布が狭い、すなわち単色性が良いことが重要である。本論文は、SEM 向けに輝度が高くかつ単色性が良いと期待される種々の電子源を高性能化する方式の検討、材料探索、実証実験などを行った結果である。

本論文は全部で 5 章から構成されており、各章の概要は次のとおりである。

第 1 章では、本論文全体の緒言として、低加速 SEM の有用性とこのための電子光学技術を俯瞰し、現在主に使われている高輝度単色電子源である CFE 電子源と SE 電子源の概要について述べ、さらに本論文で検討した、共鳴トンネル方式、低仕事関数 SE、光励起電子源の方式の三種類の電子源、および、他に検討されているナノ電子源や重い電子系の電子源について解説する。

第 2 章においては、共鳴トンネル効果をエネルギーフィルターとして用いて電子源を単色化しようとの着想から、理論的に共鳴トンネル効果を最適化しやすい半導体薄膜系に着目した。この実現のための構造を検討し、電界放出電子源の系を選んだ。すなわち、共鳴トンネルに必要な、障壁層と井戸層を電子源表面に、さらにもう一つの障壁層を電界集中して薄くなった真空準位を用いる構成である。理論的に実現可能性を検討するために、モデルにより次元の波動関数を計算して電子の透過率を計算機シミュレーションで求めた。障壁層と井戸層の材料として、AlAs/GaAs、及び SiO<sub>2</sub>/Si を検討した結果、GaAs 系で単色化の可能性が高いこと、共鳴条件では障壁層が無い場合の電界放出よりも透過確率が高い結果を得た。エネルギー幅として熱エネルギーのオーダーで準位がボケるとして 30 meV と見積もった。また、共鳴トンネル効果のためには GaAs の伝導帯の電子を放出させる必要があるが、価電子帯の電子が大量にありこれが計測の邪魔になる可能性があること、これを防ぐには n 型不純物の濃度を増やす必要があることを予想した。

次に、この系からの共鳴トンネル電子放出の原理実証するための実験検討を行った。まず、MBE 法で超格子を成長するために、針は GaAs 基板上にホトリソグラフィでエッチングして形成した高さ数  $\mu\text{m}$  の山形とし、じょうご状の引出電極を近付けて電子放出させる方法を開発した。このための電子銃を試作し、所望の電子源から電子ビームを引き出すことに成功した。次に、GaAs 針や表面に超格子を成長した針から放出した電子ビームのエネルギー幅を評価しようとしたが、表面酸化膜や表面準位に Fermi 準位のピン留めなどの影響でうまく測れない事がわかり、表面清浄化、アニール、S による表面パッシベーションを行い再現性の

あるエネルギー分布が得られるようになった。この結果、最小で半値幅 0.2 eV 程度の単色性が確認された。共鳴トンネル効果の証拠として量子井戸のサブバンド構造に着目し、不純物を原子層ドーピングしたエミッタでは肩構造が、n-p 接合を作りバンド間トンネルを利用した、n 型  $\delta$  ドーピング GaAs/p<sup>+</sup>-GaAs 構造エミッタではより明瞭にサブバンド間隔にあったエネルギー間隔からの電子エミッションが確認された。

第 3 章は、SE 電子源の単色化の試みとして、低仕事関数化拡散源の研究である。この SE 電子源の単色性は基本的に熱電子放出で決まるので、最小エネルギー幅は温度に比例する。ただし、そのまま動作温度を下げると高エネルギーの電子の量が減るので放出電流が減ってしまい使えない。これを解決するには仕事関数を下げる必要がある。従って、低温動作させるためには、より仕事関数の低い吸着構造を、低温で形成する材料が必要となる。この材料に求められることは、先の SE 電子源の節で解説したように、W 表面に仕事関数の低い吸着構造を形成すること、及び、拡散源から W 表面を拡散して針先端まで安定に供給されることが必要となる。このような振る舞いはシミュレーションで全て予想することは困難なため、実験で探す必要がある。このためにある金属元素 M と W が O または N を介してある程度大きなダイポールモーメントが予想される、IV 族、遷移金属、アルカリ土類の酸化物及び窒化物からえらび、さまざまな材料を試したところ、Sc-O/W と、Ba-O/W がそれぞれ候補として得られ、従来よりも狭いエネルギー分布が得られている。実際には安定性の点で Zr-O/W を越えるものは得られなかった。

放出電子のエネルギー分布を詳細に見ると、3 種類の電子源全てにおいて低電界条件では Schottky 電子放出のモデルと異なり、幅も 39-19% 程度狭いことがわかった。Zr-O/W の場合、従来モデルでは 0.38 eV に対して実測では 0.23 eV となっている。実験結果を説明するために従来使われてきた自由電子モデルから、より精密なバンド構造を反映した有効質量近似を取り入れたモデルを考案した。電子放出する場合の角度制限を設けることで実験結果を良く説明できることがわかった。

第 4 章は、他の 2 つの電子源と異なり、平面状の GaAs 表面に Cs-O を吸着させ、これに励起光を入射して電子を放出させる、負の電子親和力 (NEA) を用いた光励起方式を検討した。

単色性の評価のために、GaAs と Si を取り上げ、表面に Cs-O を吸着させて光励起で放出される電子線のエネルギー分布を測定した。この結果、GaAs は仕事関数の低下の程度で 0.2 から 0.08 eV と、これまでに無い単色条件があること、また、0.08 eV の場合は、エネルギー分布は熱電子放出のものと一致し、その温度は 138°C 程度と、冷熱電子放出 (Cold Thermionic Emission) と呼べるものであった。

一方、Si は単色性が 0.12 と狭い条件があるが、時間とともにピーク形状が変る、量子効率が低い等の問題があることがわかった。

次に、この電子源を SEM の電子銃に応用するための検討を行った。まず、励起光を最小に絞るために光ディスク技術を応用し、球面収差補正された非球面レンズを用い、カソードは GaAs 薄膜をガラスに接着したものを用い、電子放出する GaAs 面の裏側から励起光を入射することで、集光レンズを最適な位置まで近づけ、回折限界の  $1\mu\text{m}$  程度にできることを確かめた。これを用いて真空実験装置中で GaAs ホトカソードからの電子線を計測したところ、狭い範囲に放射している事がわかった。計算機シミュレーション結果と比較して、固体から電子放出する際に  $\pm 7^\circ$  以内に集中している事がわかった。この結果から、輝度が高い電子源が予想された。

次に、実際に電子銃を試作して低加速 SEM に搭載し、SEM 像を得たところ、分解能  $0.5\mu\text{m}$  程度と、予想よりもはるかに低い事がわかった。この原因としては、電子の光源が期待よりもはるかに大きくなっていること、放出角も広がっている事がわかった。

上記問題点の対策として、表面清浄化を検討し、原子状水素クリーニングを行うと、量子効率が 2% 程度と桁違いに改善されること、NEA 活性化で連続して電流放出できる時間が延び、さらに Cs の繰り返し蒸着で再生すること、Cs 蒸着量を 9 ML 分に増やすと連続時間が 93 時間 (1/2 減衰) まで伸びることを確認した。この原子状水素クリーニング機構を試作電子銃に設けることで、分解能 50 nm に改善した。このときの光源サイズは  $5\mu\text{m}$  程度であった。

NEA 電子源の輝度劣化原因を検討するために、評価装置を試作し、光源サイズと電子ビーム広がりナイフエッジ法で測定した。表面清浄化条件、カソードの不純物濃度条件を変えた結果、不純物濃度が高い場合 ( $3.8 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$ )、光源サイズ  $3\mu\text{m}$ 、放射角電流密度  $41 \text{mA/sr}$  (加速 2 kV)、最高の輝度  $5.8 \times 10^5 \text{A sr}^{-1} \text{cm}^{-2}$  が得られた。この値は  $\text{LaB}_6$  電子源の 10 倍になったが、現行の SE 電子源より 1 桁程度低い値である。また、輝度の劣化原因は GaAs 表面の空間電荷効果であり、これを解消するためには、不純物濃度を高めて表面空乏層を薄くすること、もしくは、励起光をパルス化して、表面にたまった電荷を抜く時間を作る事が有効であることが明らかとなった。

第 5 章は上記三種類の電子源検討の結果を総括し、さらに高輝度単色電子源研究の今後の課題について述べた。これらより、今後の材料研究などの進歩による新しい電子源、電子銃、電子線応用装置を実現するために資するものであると結論した。

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

氏名 大嶋 卓 印

(2013年 4月 現在)

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
論 文 (○:主筆)	<p>①"Electron Beam Brightness from Negative-Electron-Affinity Photocathodes for Scanning Electron Microscopy Application", <u>T. Ohshima</u> and M. Kudo, <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i> <b>43</b> (2004) 8335.</p> <p>②"NEA photocathode for SEM application", <u>T. Ohshima</u>, <i>Microelec. Eng.</i> <b>67.68</b> (2003) 951.</p> <p>③"Study of Energy Distribution of Schottky Emitted Electrons and its Theoretical Analysis using Effective Mass Approximation", <u>T. Ohshima</u> and H. Nishiyama, <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i> <b>42</b> (2003) 6564.</p> <p>④"Resonant tunneling electron beam source using GaAs/AlAs/GaAs field emitter", <u>T. Ohshima</u>, T. Mishima, M. Okamoto and K. Kuroda, <i>Appl. Surf. Sci.</i> <b>111</b> (1997) 170.</p> <p>⑤"Proposal of Monochromatic Electron Beam Source Using Resonant Tunneling Effect", <u>T. Ohshima</u>, M. Okamoto and K. Kuroda, <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i> <b>34</b> (1995) L1390.</p> <p>"Status of the high brightness polarized electron source using transmission photocathode", N. Yamamoto, X.G. Jin, A. Mano, T. Ujihara, Y. Takeda, S. Okumi, T. Nakanishi, T. Yasue, T. Koshikawa, <u>T. Ohshima</u>, T. Saka and H. Horinaka, <i>J. Phys.: Conference Series</i>, <b>298</b> (2011) #012017.</p> <p>"Real time magnetic imaging by spin-polarized low energy electron microscopy with highly spin-polarized and high brightness electron gun", M. Suzuki, M. Hashimoto, T. Yasue, T. Koshikawa, Y. Nakagawa, T. Konomi, A. Mano, N. Yamamoto, M. Kuwahara, M. Yamamoto, S. Okumi, T. Nakanishi, X.G. Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Kohashi, <u>T. Ohshima</u>, T. Saka, T. Kato, and H. Horinaka, <i>Appl. Phys. Express</i>, <b>3</b> (2010) #026601.</p> <p>"High brightness and high polarization electron source using transmission photocathode with GaAs-GaAsP superlattice layers" N. Yamamoto, T. Nakanishi, A. Mano, Y. Nakagawa, S. Okumi, M. Yamamoto, T. Konomi, X. Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, <u>T. Ohshima</u>, T. Saka, T. Kato, H. Horinaka, T. Yasue, T. Koshikawa and M. Kuwahara, , <i>J. Appl. Phys.</i> <b>103</b> (2008) 064905.</p> <p>"Laser Focusing System for High Brightness Polarized Electron Source for SPLEEM", A. Mano, N. Yamamoto, K. Tamagaki, S. Okumi, M. Yamamoto, M. Kuwahara, R. Sakai, T. Morino, A. Utsu, T. Nakanishi, and <u>T. Ohshima</u>, <i>AIP Conference Proceedings</i>. <b>915</b> (2007) 1081.</p> <p>"Miniaturized electron-gun for a High-Resolution scanning electron microscope using non-evaporable getter pump", S. Katagiri and T. Ohshima, <i>Microelec. Eng.</i> <b>83</b> (2006) 1058.</p> <p>「ショットキー電子源による電子ビームの狭エネルギー幅化」, 西山英利 大嶋卓 品田博之, <i>応用物理</i> 71 (2002) 438.</p> <p>"Monochromatic Electron Emitters using Heavy-Fermion Materials", H. Nishiyama, <u>T. Ohshima</u> and M.Okamoto, <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i> <b>38</b> (1999) 6066.</p>

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
講演	<p>“Highly bright and monochromatic electron sources for scanning electron microscopy” <u>T. Ohshima</u> and T. Ogashiwa, 53rd International Field Emission symposium, (2012/05/21-25)</p> <p>“High Brightness and Highly Polarized Electron Beam for Real-time Measurement in SPLEEM”, M. Kuwahara, A. Mano, Y. Nakagawa, S. Okumi, T. Nakanishi, M. Suzuki, M. Hashimoto, T. Yasue, T. Koshikawa, X.G. Jin, N. Yamamoto, T. Ujihara, Y. Takeda, M. Yamamoto, <u>T. Ohshima</u>, T. Kohashi, T. Saka, T. Kato and H. Horinaka, 7th Int. Symp. on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices (ALC'09), (2009/12/06-11)</p> <p>SPLEEM 関連の講演他 5 件</p> <p>「ショットキー電子放出のエネルギー分布と有効質量近似モデル」, 大嶋 卓, 西山 英利, 第 3 回荷電粒子光学シンポジウム, (2003/09/19)</p> <p>「NEA ホトカソードの輝度の検討」, 大嶋 卓, 工藤 真, 第 5 0 回応用物理学関係連合講演会, (2003/03/27)</p> <p>“NEA photocathode for SEM application”, <u>T. Ohshima</u>, 28th Micro- and Nano-Engineering (MNE2002), (2002/09/16-20)</p> <p>「NEA ホトカソードの SEM 応用の検討」, 大嶋 卓, 第 4 9 回応用物理学関係連合講演会, (2002/03/27)</p> <p>「光励起方式による極単色電子源の検討」, 大嶋 卓, 日本学術振興会 荷電粒子ビームの工業への応用第 132 委員会 第 1 4 9 回研究会, (2000/05/11)</p> <p>「Si を用いた NEA ホトカソードの放出電子の全エネルギー分布」, 大嶋 卓, 第 4 7 回応用物理学関係連合講演会, (2000/03/28)</p> <p>「エネルギー幅の狭いショットキー電子源の研究」, 西山 英利, 大嶋 卓, 品田 博之, 日本電子顕微鏡学会第 4 4 回シンポジウム, (1999/11/17)</p> <p>「NEA ホトカソードの放出電子の全エネルギー分布」, 大嶋 卓, 第 6 0 回応用物理学界学術講演会, (1999/09/01)</p> <p>「(Ba, Sr, Ca) / O / W ショットキー電子源の電子放出特性」, 西山 英利, 大嶋 卓, 第 4 6 回応用物理学関係連合講演会, (1999/03/28)</p> <p>“Tungsten Schottky Emitters with Reservoirs of Metal Oxide or Nitride”, H. Nishiyama and <u>T. Ohshima</u>, 2nd. International Vacuum Electron Sources Conference (IVESC '98), (1998/07/07-10)</p> <p>“Resonant Tunneling Electron Beam Source Using GaAs/AlAs/GaAs Field Emitter”, <u>T. Ohshima</u>, T. Mishima and M. Okamoto, International Vacuum Electron Sources Conference (IVESC-96) (1996/07/01-04)</p> <p>「<math>\delta</math>-ドープ n-GaAs / p-GaAs フィールドエミッタからの電子放出」, 大嶋 卓, 三島 友義, 西山 英利, 第 4 3 回 応用物理学関係連合講演会, (1996/03/26)</p>

## 早稲田大学 博士（工学） 学位申請 研究業績書

種 類 別	題名、 発表・発行掲載誌名、 発表・発行年月、 連名者（申請者含む）
	<p>「GaAs フィールドエミッタの電子放出特性」, 大嶋 卓, 三島 友義, 岡本 政邦, 日本学術振興会 真空マイクロエレクトロニクス第158委員会 第11回研究会, (1995/12/19)</p> <p>「Sパッシベーション処理 GaAs フィールドエミッタの電子放出特性」大嶋卓, 三島 友義, 黒田 勝広, 第56回応用物理学会学術講演会, (1995/08/26)</p> <p>「GaAs/AlAs 超格子被覆を持つ GaAs フィールドエミッタからの電子放出」大嶋卓, 三島 友義, 黒田 勝広, 第42回応用物理学関係連合講演会, (1995/03/26-29)</p> <p>「共鳴トンネル効果を用いた単色電子線源の提案」, 大嶋 卓, 岡本 政邦, 黒田 勝広, 第55回応用物理学会学術講演会, (1994/09/19-22)</p>
その他 (論文)	<p>"Electron Detection Performance of Diamond Avalanche Diode", H. Morishita, <u>T. Ohshima</u>, M. Hatano, Y. Iwakaji, O. Maida and T. Ito, , <i>J. Vac. Sci. Technol. B</i>, <b>28</b> (2010) 1169.</p> <p>"Stabilization of a tungsten &lt;310&gt; cold field emitter" K. Kasuya, S. Katagiri, <u>T. Ohshima</u> and S. Kokubo, <i>J. Vac. Sci. Technol. B</i>, <b>28</b> (2010) L55.</p> <p>"Alignment of CS<sub>2</sub> in intense nano-second laser fields probed by pulsed gas electron diffraction", K. Hoshina, K. Yamanouchi, <u>T. Ohshima</u>, Y. Ose, and H. Todokoro, <i>J. Chem. Phys.</i> <b>118</b>, (2003) 6211.</p> <p>"Direct observation of molecular alignment in an intense laser field by pulsed gas electron diffraction II: analysis of anisotropic diffraction image", K. Hoshina, K. Yamanouchi, <u>T. Ohshima</u>, Y. Ose, and H. Todokoro, <i>Chem. Phys. Lett.</i> <b>353</b> (2002) 33.</p> <p>"High speed Si PBT with buried single crystal silicide electrode by MBE", <u>T. Ohshima</u>, N. Nakamura, K. Nakagawa, K. Yamaguchi and M. Miyao, <i>IEDM Technical Digest</i>, (1991) 33.</p> <p>"Self-aligned NiSi<sub>2</sub> electrode fabrication by MBE and its application to etched-groove Permeable Base Transistor (PBT)", <u>T. Ohshima</u>, K. Nakagawa, N. Nakamura and Y. Shiraki, <i>J. Crystal Growth</i> <b>95</b> (1988) 490.</p>
その他 (特許出願)	<p>特願 2000-189724「光励起電子線源および電子線応用装置」、大嶋 卓、品田 博之、戸所 秀男、福原 悟 光励起電子源の関連特許他 5 件</p> <p>特願平 9-355672「熱拡散補給型電子源, 電子線発生方法および電子線応用装置」、大嶋 卓、西山 英利 単色化 SE 電子源の関連特許他 5 件</p> <p>特願平 5-161621 「電子線源及びそれを用いた電子線応用装置と電子装置」、大嶋 卓、黒田 勝広、森 光廣、中川 清和、三島 友義、比留間 健之、岡本 政邦、宮尾 正信 共鳴トンネル単色電子源の関連特許他 7 件</p>