

早稲田大学大学院 先進理工学研究科

博士論文審査報告書

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 7月

電子顕微鏡を含む電子ビーム機器は、材料・デバイス開発、半導体素子製作現場で使用され、学術研究・科学技術の広い領域をささえる不可欠の基盤技術である。歴史的に本邦の技術的優位性を保持してきた技術分野でもあり、多くの優れた理化学装置がわが国で開発され、研究開発の最前線、新物質開発、新デバイスの改良等の現場にとどまらず、生体・ソフトマター、有機分子等に関する基礎研究分野で使われ、多くの研究実績が蓄積されている。

例えば、電子源に関しては日比カソードや LaB₆ 単結晶電子銃を代表とする研究開発がわが国を中心に展開し、電界放出電子銃 (FE 銃) 搭載の各種顕微鏡 (走査型顕微鏡、超高压電子顕微鏡、電子ビームホログラフィ装置) や極高真空動作の高輝度 FE 電子銃が世界に先駆けて商品化され、各国に普及している。

しかし、最近、ドイツのダームシュタット工科大学のローズ教授が 50 年に渡って心血を注いだ球面収差補正技術を完成させ、電子顕微鏡の空間分解能を大きく向上させた。球面収差補正が可能になった今段階で、次の重要な課題として浮上するのが色収差補正技術の確立である。

また、近年、従来型の 100KV 以上の電子顕微鏡に比較して、低加速電子ビーム利用の利点 (1. 試料へのダメージが少なく、2. 絶縁物の帯電回避が容易であり、3. ソフトマターや生体材料を構成する軽元素の衝突断面積が大きいなど) が再認識され、その技術開発が走査型電子顕微鏡を中心に活発化している。ここでも、また色収差が大きな問題となっている。色収差のため低速では著しく空間分解能が悪化するため、単色高輝度電子ビームを放出する電子源の出現が熱望されている。しかし残念ながら、FE 電子銃開発以後、顕微鏡の性能を向上させるような電子源の開発はこの半世紀成功していない。

本博士論文の主題は、高輝度を保ちつつ、単色化された電子ビームを放出する電子源を開発することによって、上記の課題を解決することを目指した野心的な研究である。電子顕微鏡のレンズの色収差問題を解決するために試みた、異なる分野間で密接に連携した労作でもあり、我が国の電子ビーム装置開発にとって極めて多くの有意義な知見をもたらす報告と評価される。

この論文では 3 つの研究戦略に沿って単色化ビームの実現を目指した。そのうち 2 件の結果は、まだ、現在実用にはほど遠い状態であるが、残る 1 件はスピン偏極ビームを放出する実用電子源として、目下使用され始めており、今後、単色化を生かした応用についても十分に期待できる。

本論文は全部で 5 章から構成され、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、最近のホットな関心事である低加速 SEM の有用性とその電子レンズ技術の現状を述べ、現在の実用高輝度電子源である FE 電子源とショットキー電子源 (熱電界電子銃) の概要について述べ、さらに本論文で検討する共鳴トンネル現象、低仕事関数のショットキー電子源、および光電子源や、

その他の電子源の技術的背景について説明している。

第2章では、第一の試みである共鳴トンネル現象の利用について議論している。トンネル効果は古典的粒子では越えられないエネルギー障壁でも量子力学的振る舞いによって通過する現象で、電界電子放出で広く利用されている。共鳴トンネル効果は2つのポテンシャル障壁ではさまれた量子井戸の離散的なエネルギー準位を介して、電子が共鳴的にトンネルする現象であり、共鳴するエネルギーをもつ電子のみが、選択的に通過でき、他のエネルギーの電子はすべて反射する。このため、極めてQ値の高いエネルギーフィルター機能をもつ。すでに共鳴トンネルトランジスタが低温動作する半導体デバイスとして開発されている。このデバイス内部で利用されている共鳴トンネル効果による単色電子輸送を固体外に取り出し、単色電子ビームとする試みである。まず、2つのポテンシャル障壁の一方は、半導体デバイスと同様に、異なる化合物半導体の人工格子（超長周期）構造で作成し、他方の障壁は表面ポテンシャル障壁を使用する。具体的な材料の組み合わせ、寸法を理論的に検討設計し、電子の透過率を波動関数から計算し、AlAs/GaAs系で単色化の実現可能性が高いことを予想した。

次に、具体的に半導体製造技術を駆使して電子源を製作した。MBE法によりGaAs基板上に超格子を成長させ、光微細加工法により高さ数 μm の針先端を成形し、その直前にコーン状の引出電極を配置する構造をもつ電子源を製作した。そして、製作表面のままではデータの再現性が悪いため、表面清浄化、アニールおよび表面パッシベーションにより、放出面を安定化させ、最終的にエネルギー半値幅0.2 eVの電子ビームの放出を確認した。この数値は共鳴トンネル現象からの期待値に比較して、広く、実用電界電子銃の値程度であり、共鳴トンネル現象の利点が引き出されていない。これらの一連の結果はGaAs等の化合物半導体の強電界中での清浄な安定表面を再現性よく保つ困難性を認識させ、今後の同じ原理を使う電子源開発にとって、有用なデータを提供していると判断される。

第3章では、第2の試みであるショットキー熱電界電子源による単色化研究の結果について報告している。熱電子のエネルギー幅は温度に比例する。動作温度の減少は放出電流も減少させるため、輝度を劣化させずに、低温動作させるには低い仕事関数の面を安定に維持することが必要になる。既存のショットキー熱電子源としては、Zr-O/Wの組み合わせ(仕事関数2.6eV)がオレゴン大学院大学のスワンソン教授によって半世紀以上前に見出され、実用化されている。著者は金属原子-（酸素原子または窒素原子）/Wの組み合わせで、金属元素としてIV族、遷移金属、アルカリ土類金属元素をいろいろ変えて検討した結果、Sc-O/WとBa-O/Wで、低い仕事関数が得られことを見出し、従来よりも狭いエネルギー幅のビームを得た。しかし、放出電流の安定性の点でZr-O/Wを越えるものはまだ得られていない。

第4章では、第3の試み（光励起電子放出）について報告している。P-型半導体表面にCs原子と酸素原子を吸着するとCs-Oの電気双極子層によって表面ポテンシャル障壁を下げ、結果としてNEA（Negative Electron Affinity：負の電子親和力）状態になる。光の振動数を最適に選ぶと、スピナー軌道相互作用によって縮退のとけた価電子帯のスピン偏極電子を、選択的に伝導帯に励起させることができ、スピン偏極電子源として、電子顕微鏡以外のビーム機器で使用されている。本研究では、この電子源を単色・高輝度ビーム電子源として、再検討し、電子顕微鏡への応用のための工夫—主に高輝度化—を重ねた。その結果、NEA表面から放出された電子の最小エネルギー幅はGaAsで0.08eVで、Siで0.12eVであった。0.08eVのエネルギー幅は、138°Cの熱分布のエネルギー幅に相当し、低温熱電子放出と呼べるものであることを見出している。このことはNEA状態の表面を更に極低温にすれば、さらに狭いエネルギー幅（数meV）の電子ビームの実現の可能性も高く、今後の新技術開発にとって大変重要な知見である。

第4章の残りの部分で、このNEA光電子源を走査型電子顕微鏡に実際に搭載し、空間分解能50nm（光源サイズ5 μ mの時）を実現したことを報告している。具体的には、背面から収束レーザービームを照射し、波長限界に近い光源サイズ1 μ mを実現し、放射角電流密度41mA/sr（加速2kV）、最高の輝度 $5.8 \times 10^5 \text{ A sr}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ を得た。この値はLaB₆電子源の値より1桁高い。第5章では本研究を総括し、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ている。

以上まとめると、本論文は3つアプローチから高輝度で単色なビームを実現することを試みた結果、NEA光電子放出現象を利用した電子銃で、電子顕微鏡で使用可能な高輝度と、同時に従来の値より1桁狭いエネルギー幅を実現した。この電子源技術はスピン偏極電子顕微鏡に受け継がれて、現在実用化されつつある。また、今後このビームの単色性が十分に活用できるようになれば、この分野の波及効果もはかりしれない。これらの結果は、ナノ物質科学を含む材料科学の測定手法の開発を通して、これらの研究分野の発展に寄与すること大であることのみならず、我が国の産業分野へも大いなる貢献をなす研究であると評価できる。よって本博士論文は博士（工学）として価値あるものと認める。

2013年7月

審査員

（主査）	早稲田大学教授	工学博士（東北大学）	大島忠平
	筑波大学名誉教授	Ph.D（MIT）工学博士（名古屋大学）	山本恵彦
	早稲田大学名誉教授	理学博士（大阪大学）	角田頼彦
	早稲田大学教授	工学博士（東京工業大学）	小山泰正