

ナノ秒時間分解計測に向けた NEA フォトカソード
を電子源とする走査電子顕微鏡の開発

Development of Scanning Electron Microscope
Equipped with Electron Source Using NEA Photocathode
towards Nanosecond Time-resolved Measurement

2021 年 9 月

名古屋大学大学院 工学研究科

森下 英郎

目次

1. 序論	2
1.1 緒言	2
1.2 本研究の目的	4
1.3 本論文の構成	5
2. 走査電子顕微鏡	11
2.1 緒言	11
2.2 原理	13
2.3 低照射エネルギーのSEM観察	18
2.4 照射ビーム径	20
2.5 色収差	22
2.6 色収差の低減手法	24
2.7 電子銃輝度	30
2.8 結論	33
3. NEA フォトカソードを用いた電子源	38
3.1 緒言	38
3.2 電子放出原理	40
3.3 空間電荷効果と表面電荷効果	46
3.4 NEA フォトカソードを用いた電子源の特長	48
3.5 パルス電子銃	52
3.6 開発した電子銃の構成	53
3.7 結論	55
4. 低照射エネルギーの像分解能評価	62
4.1 緒言	62
4.2 仮想光源径の評価	63
4.3 連続電子線の輝度評価	67
4.4 分解能評価結果	68
4.5 他の色収差補正技術との比較	70
4.6 結論	72
5. 光励起パルス電子銃の輝度評価	76
5.1 緒言	76
5.2 評価系の構成	79
5.3 電子線パルス波形	82

5.4	パルス電子線の輝度評価結果	84
5.5	励起光デフォーカス時の挙動	86
5.6	考察	87
5.7	空間電荷効果を考慮した軌道解析	91
5.8	パルス SEM の像分解能評価	96
5.9	結論	99
6.	総括	104
6.1	本論文の結果概要	104
	謝辞	107
	業績リスト	110

略号一覧

- APD : Avalanche photodiode (アバランシェフォトダイオード)
- BN : Boron Nitride (窒化硼)
- BSE : Backscattered electron (反射電子、後方散乱電子)
- CFE : Cold-field-emission-type (冷陰極電界放出型)
- CNT : Carbon nanotube (カーボンナノチューブ)
- DR method : Derivative method (DR 法)
- FE : Field emission (電界放出型)
- ET detector : Everhart & Thornley detector (ET 型検出器)
- GPT : General Particle Tracer
- IoT : Internet of Things
- LaB₆ : Lanthanum Hexaboride (六ホウ化ランタン)
- MRAM : Magnetoresistive random access memory (磁気抵抗メモリ)
- NA : Numerical aperture (開口数)
- NEA : Negative electron affinity (負の電子親和力)
- NEG pump : Non-evaporable getter pump (非蒸発型ゲッター(ポンプ))
- PEA : Positive electron affinity (正の電子親和力)
- RAM : Random Access Memory (ランダムアクセスメモリ)
- SEM : Scanning electron microscope (走査電子顕微鏡)
- STEM : Scanning transmission electron microscope (走査透過電子顕微鏡)
- STT-MRAM : Spin Transfer Torque MRAM (スピン注入トルク型 MRAM)
- TEM : Transmission electron microscope (透過電子顕微鏡)
- WD : Working distance (作動距離)
- SCE : Space charge effect (空間電荷効果)
- SE : Secondary electron (二次電子)
- SNR : Signal to noise ratio (信号ノイズ比)
- SRAM : Static RAM (スタティック RAM)
- UV : Ultraviolet (紫外線)
- WD : Working distance (作動距離)
- XMCD : X-ray Magnetic Circular Dichroism (X 線磁気円二色性)

1. 序論

1.1 緒言

社会生活における利便性、快適性、経済性、安全性の向上を目的として、インターネットに接続された様々なモノからデータを収集、送信、処理して抽出された有益な情報を利活用する IoT が急速に進展している[1]。IoT の適用対象は、家電や自動車など個人で利用される物から、工業機器や医療機器など社会インフラに関する物まで多岐に渡る。IoT の進展に伴い日常的に扱われるデータ量は増加の一途を辿っており、その処理を担う情報機器に搭載されるデバイスの高機能化が求められている。情報機器に搭載される半導体デバイスは微細化することで高速化と低消費電力化を両立できるため、ムーアの法則に従いこれまで3年に4倍のペースで高集積化が進行してきた[2]。2020年には1チップあたりのトランジスタ数が約 10^{10} 個に到達し、トランジスタのゲート長は10 nm 程度まで微細化が進行している[3]。2次元的な微細化は限界に近づき、最近ではデバイス構造を3次元的に構築することで集積度向上、高速化、低消費電力化が進められている[2]。一方、さらなる高速化や低消費電力化が可能な次世代デバイスとして、電荷を利用する半導体デバイスよりもエネルギー散逸が少ないスピンを利用した磁性体デバイスに対する期待が高まっている[4]。磁性体の磁気抵抗を利用する MRAM は高速動作が可能（書込み時間<5 ns）な不揮発性メモリであり、既存の低速で不揮発性の NAND フラッシュメモリと高速で揮発性の SRAM の両者の良い特性を兼ね備えたメモリとして期待されている[1]。現在は 22/28 nm 世代プロセスを利用した MRAM を搭載したデバイスが製品化されている[5]。次々世代のメモリとして、数 nm オーダの磁気渦構造から成る磁気スキルミオンを利用した磁気デバイスも検討されている[6, 7]。

半導体デバイスの製造工程において、ウェハ上に形成されたパターンの寸法管理には、試料表面の微細構造を nm オーダの空間分解能で計測できる走査電子顕微鏡（Scanning electron microscope : SEM）が利用されている[8-12]。半導体デバイスの寸法管理に利用される SEM は測長 SEM と呼ばれ、ウェハを割断せずに照射エネルギー1 keV 程度の電子線をウェハ上面から照射してパターン寸法を非破壊計測することで半導体デバイスの歩留まり低減に貢献している。現行の測長 SEM はパターン寸法を nm オーダで高精度に計測する機能に特化しており、磁気計測機能は備えていない。一方、電子線のスピンの揃った偏極電子線を搭載した SEM を用いることで磁性体試料内部の磁気特性の計測が可能であり[13, 14]、磁気デバイスの表面磁気特性の非破壊計測手段として利用できる可能性がある。ただし、照射電子線と磁性試料のスピン-スピン相互作用を利用して有意な磁気コントラストを得るには、試料に対する電子線の照射エネルギーを 1 keV よりも小さく設定する必要がある[15, 16]。低照射エネルギーの SEM 観察で高い分解能を得るには色収差を低減することが重要となる。色収差は照射電子線のエネルギーのばらつきに起因する、集束位置でのスポ

ットサイズのボケ量に関係する。色収差は、SEM の電子線のエネルギー幅に比例し、試料に対する照射エネルギーに反比例する[13]。このため、低照射エネルギーの SEM 観察で高い空間分解能を得るには、エネルギー幅の小さい電子源が好ましい[17]。既存の電子顕微鏡に搭載されている電子源のエネルギー幅は Schottky 電子源で約 0.6 eV、CFE 電子源で 0.3 eV であり[18]、よりエネルギー幅の小さい単色性の良い電子源が必要とされる。なお、一般的に SEM 観察で照射エネルギーを約 1 keV 以下にすると、プローブ電子線の試料内での散乱領域を小さくなるため、試料極表面の観察ができるほか、電子線照射に伴う試料ダメージや帯電に伴う像障害を低減できる[19]。このため、低照射エネルギーの SEM 観察性能は電子源のスピンの偏極度の有無に関わらず重要な性能指標となっている。

以上のような背景から本研究では、高偏極の電子線を発生できることに加え、高輝度かつ単色な電子源として、負の電子親和力 (NEA) の表面を有する半導体フォトカソードを用いた電子源に着目した。本研究で用いた NEA フォトカソード電子源の特長を、既存の電子顕微鏡に搭載される Schottky 電子源、冷陰極型 (CFE) 電子源とともに表 1-1 にまとめる[18]。

表 1-1. 電子源の輝度とエネルギー幅の比較

	Schottky型	CFE型	光励起電子源 (NEAフォトカソード)
(換算)輝度	2×10^7 A/m ² /sr/V	3×10^8 A/m ² /sr/V	$> 10^7$ A/m ² /sr/V
エネルギー幅	0.6 eV	0.3 eV	< 0.2 eV
スピン偏極度	—	—	max 90%
最短パルス幅	—	—	~10 ps

NEA 表面とは半導体表面で伝導帯の下端のエネルギー準位よりも真空準位が低くなっている表面を指す[20]。ここに励起光を照射すると、価電子帯から伝導帯に励起された電子が真空領域に放出される。一般的に NEA 表面から放出される電子線のエネルギー幅は 0.2 eV 以下であり、電子顕微鏡で利用される CFE 電子源のエネルギー幅より小さい。また、本研究で使用した NEA フォトカソードは名古屋大学でスピン偏極電子源として開発されたもので、最大で 90 %程度の高いスピン偏極度が確認されている[20]。また、この NEA フォトカソードは NEA 表面から電流密度の高い電子線を放出できるように最適化された構造を有し、照射エネルギー 30 keV で評価された輝度が Schottky 電子源と同程度の輝度が報告されている[21]。また、励起光をパルス化することで、最短でパルス幅 10 ps 程度のパルス電子線が得られる[20]。このように、高輝度、単色性、高偏極、パルス制御性を兼ね備えた NEA フォトカソード電子源を SEM に搭載することで、磁気計測機能や時間分解計測機能を備えた SEM を構築し、低照射エネルギー域の観察性能の向上をはかる。

1.2 本研究の目的

本研究では高偏極度の短パルス電子線を搭載した SEM を用いて、nm オーダの空間分解能と ns オーダの時間分解能を両立した実動作環境での磁気計測手法の確立を目的として、NEA フォトカソードを用いた高偏極電子源とする電子銃を作製し、このフォトカソード型電子銃を搭載した SEM の実機評価を行う。

磁気特性の時間分解計測に関して、NEA フォトカソードを用いた高偏極パルス電子源を透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope : TEM) または走査透過電子顕微鏡 (Scanning transmission electron microscope : STEM) に搭載した場合、SEM よりも高い空間分解能で同様の計測ができるものと期待される。しかし、TEM や STEM を用いた観察では照射電子線が透過できるようにするためには試料を 100 nm 程度以下の厚みに薄片化する必要がある[18]、試料の薄片化に伴いデバイス特性が変化する試料を計測対象とすることができない。これに対し SEM では、試料の薄片化が不要でバルク試料を非破壊で計測できる。また、SEM を用いた計測では試料周囲の空間的な制約が小さい。このため、照射電子線に対して悪影響が出ない範囲であれば、温度、電界、磁界などの外場を印加するための環境を試料周囲に配置できる。必要に応じて、デバイスの特定部位と電気的にコンタクトを取るためのプロービングシステムと組合せることも可能である[22]。このように、計測対象のデバイスを実形状かつ実動作環境で計測できる点は SEM の優位点である。なお、電子顕微鏡以外に円偏光の X 線自由電子レーザーを用いた X 線磁気二色性分光法 (XMCD) による磁気特性の時間分解計測も考えられるが[4]、高い空間分解能を得るために必要な高輝度特性を得るために、エネルギー 10 GeV 程度に加速した電子線を蛇行運動させるためのアンジュレータを通過させる必要がある[23]。現状で X 線自由電子レーザーは国内では Spring-8 に隣接した SACLA での利用に限られ、独立した非破壊検査装置として X 線自由電子レーザーを利用することは困難である。

以上を踏まえ本研究では、NEA フォトカソードを用いた電子源を SEM に搭載し、高性能な電子顕微鏡に搭載される電子銃として必須条件となる高輝度かつ単色な特性を備えることを確認し、低照射エネルギーにおける分解能向上を実現する。はじめに高輝度単色フォトカソードの励起光源として連続光源を用い、連続電子線について低照射エネルギーにおける分解能向上を検証する。また、この電子銃はフォトカソードに照射する励起光をパルス化することで短パルス電子銃、円偏光で励起することでスピン偏極電子銃として利用できることから、時間分解計測やスピン計測への応用を図る。

特に本研究で使用したフォトカソードは、電子線をパルス化した場合も高輝度かつ単色な特性を備える点に着目し、短パルス電子銃を搭載した SEM について照射性能を検証する。表 1-1 に記載した通常の電子顕微鏡に搭載される熱電子源、Schottky 電子源、CFE 電子源

では、それ単独ではパルス電子線を発生させることができない。一方で、これらの電子源は、金属表面の光電効果を利用して、陰極先端部に高強度の UV パルス光を照射することでパルス電子源として利用することができる。各電子源をパルス電子銃として利用した場合の特長を表 1-2 にまとめる。

表 1-2. パルス電子銃のエネルギー幅とパルス幅の比較

	Schottky型 (UVパルス光励起)	CFE型 (UVパルス光励起)	光励起電子源 (高輝度NEAフォトカソード)
エネルギー幅	> 1 eV	> 1 eV	<0.2 eV
最短パルス幅	<1 ps	<1 ps	~10 ps

既存の電子源に UV パルス光を照射することの手法で得られる、金属表面の光電効果を利用するパルス電子線は光電効果を利用するため、エネルギー幅が数 eV 程度と大きい。これに対し、本研究で用いた高輝度単色フォトカソード電子源の励起光にパルス光を照射化することで得られるパルス電子線では、連続電子線の場合と電子放出原理が同じであるため、エネルギー幅は 0.2 eV 以下と小さい特長を持つ[20]。

短パルス電子銃を搭載した電子顕微鏡を用いた代表的な計測アプリケーションは、ポンプ-プローブ法による高速現象の時間分解計測である[24-26]。この手法を電子顕微鏡に適用する場合は、試料に照射するパルス光とパルス電子線のタイミングを制御し、パルス光で励起された試料をパルス電子線で計測できる。本研究では磁気デバイスのスイッチング周波数は 1 GHz 程度のものが多いことを踏まえ[6, 7, 27-30]、パルス幅ナノ秒程度のパルス SEM の低照射エネルギーの照射条件について、電子線のパルス波形に基づきパルス電子線の輝度を評価した。さらにパルス化された照射電子線を用いて SEM 像を取得し連続電子線とパルス電子線で像分解能を比較、検証する。

1.3 本論文の構成

本論文は全 6 章で構成されている。第 2 章では、SEM の原理や SEM の照射ビーム径に寄与する各種収差を説明し、その中で低照射エネルギー域の照射ビーム径に寄与する色収差について詳細を説明する。第 3 章では、本研究で使用した高輝度単色フォトカソードの NEA 表面の形成原理や、フォトカソード内で励起された電子が真空領域に放出されるまでの過程に加え、このフォトカソードを用いた電子源の特長である高輝度特性、単色性、干渉性などについて説明する。また、SEM に搭載するために製作した電子銃の構造や、電子銃として利用するための表面クリーニング手法、および活性化手順について説明する。第 4 章では、製作した光励起電子銃を SEM に搭載し、使用した NEA フォトカソードに備わる単色性の

効果を検証するために照射エネルギー1 keV で取得した SEM 像の分解能評価を実施した結果を示す。また、これに付随して光励起電子銃の仮想光源径の評価結果と輝度評価した結果を示す。第 5 章では、製作した光励起電子銃から放出されたパルス電子線の輝度を照射エネルギー3 keV で評価した結果を示す。特に低照射エネルギー域で 1 パルスあたりの電子数を大きくしたパルス条件では、空間電荷効果などの影響により電子間のクーロン反発に起因する悪影響が顕在化し、パルス電子線の照射性能の劣化が懸念される。この点について、空間電荷効果を考慮した軌道シミュレーション解析の結果に基づき輝度を評価する。第 6 章では得られた結果を総括する。

第 1 章の参考文献

- [1] 菊地 正典, IoT を支える技術 あらゆるモノをつなぐ半導体のしくみ, SB クリエイティブ (2017 年)
- [2] 井上 敬介, 「ムーアの法則」の進化についての一考察, 研究 技術 計画 Vol. 35, No. 2, 263-276 (2020).
- [3] https://en.wikipedia.org/wiki/Transistor_count
- [4] 和達 大樹, スピンのダイナミクスを元素別に見る, 日本物理学会誌 Vol. 73, No. 1, 4-5 (2018).
- [5] 野澤 哲生, MRAM が拓く異次元コンピューター, 日経エレクトロニクス, pp. 26-45 (2020).
- [6] T. Shimojima, A. Nakamura, X. Yu, K. Karube, Y. Taguchi, Y. Yokura, and K. Ishizuka, Nano-to-micro spatiotemporal imaging of magnetic skyrmion's life cycle, *Sci. Adv.* 7, No. 25 (2021).
- [7] Y. Nakatani, K. Yamada, and A. Hirohata, Discrimination of skyrmion chirality via spin-orbit and -transfer torques for logic operation, *Sci. Rep.* 11, 8415 (2021).
- [8] K. Nakamae, Electron microscopy in semiconductor inspection, *Meas. Sci. Technol.* 32 052003 (2021)
- [9] T. Aoyama, M. Nagoshi, H. Nagano, K. Sato, and S. Tachibana, Selective Backscattered Electron Imaging of Material and Channeling Contrast in Microstructures of Scale on Low Carbon Steel Controlled by Accelerating Voltage and Take-off Angle, *ISIJ International*, Vol. 51, No. 9, pp. 1487-1491 (2011).
- [10] D. Koga, S. Kusumi, R. Shodo, Y. Dan and T. Ushiki, High-resolution imaging by scanning electron microscopy of semithin sections in correlation with light microscopy, *Microsc.*, Vol. 64, No. 6 (2015).
- [11] 佐藤博文, 竹内秀一, 尾吹友晴, 笹島正弘, 坂本直樹, 板橋洋憲, ナノテク材料研究を加速する電界放出形走査電子顕微鏡「SU8200 シリーズ」, 日立評論 Vol. 95, No. 9, 20-25 (2013).
- [12] 赤津昌弘, 小柏剛, 伊東祐博, 微細計測への挑戦 — 走査電子顕微鏡「SU9000」—, 日立評論 Vol. 94, No. 2, 174-175, (2012).
- [13] L. Reimer, *Scanning Electron Microscopy Physics of Image Formation and Microanalysis Springer Series in Optical Sciences 2nd Edition*, 1998.
- [14] D. E. Newbury, D. C. Joy, P. Echlin, C. E. Fiori, and J. Goldstein, *Advanced Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*, Springer, 1986.
- [15] 越川 孝範, 鈴木 雅彦, 安江 常夫, E. Bauer, 中西 彊, 金 秀光, 竹田 美和, スピン偏

- 極 LEEM, 顕微鏡 Vol. 48, No. 1, pp.10-14 (2013).
- [16] 越川 孝範, 鈴木 雅彦, 安江 常夫, E. Bauer, 中西 彊, 金 秀光, 竹田 美和, スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡, *J. Vac. Soc. Jpn.* Vol. 57, No. 10, pp.382-390 (2014).
- [17] D. C. Bell and N. Erdman, *Low Voltage Electron Microscopy Principles and Applications* (Wiley), pp. 1–30 (2013)
- [18] 日本分析化学会 編, 半導体・電子材料分析, 丸善出版 (2013年).
- [19] Ilona Müllerová, Imaging of specimens at optimized low and very low energies in scanning electron microscopy, *Scanning Microscopy* Vol. 13, No. 1, 7-22 (1999).
- [20] 桑原 真人, スピン偏極パルス透過電子顕微鏡の開発, *まてりあ* Vol. 58, No. 5, 269-274 (2019) .
- [21] M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Saitoh, X. Jin, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and N. Tanaka, Coherence of a spin-polarized electron beam emitted from a semiconductor photocathode in a transmission electron microscope, *Appl. Phys. Lett.* 105, 193101 (2014).
- [22] 福井 宗利, 奈良 安彦, 古川 貴司, 三井 泰裕, 矢野 史子, 微小デバイス欠陥解析システム「ナノ・プローバ」、*日立評論* Vol. 88, No. 3, pp. 57-60 (2006).
- [23] 石川 哲也, X線自由電子レーザー SACLA、*ぶんせき* No. 2, 71-78 (2013) .
- [24] E. Najafi, V. Ivanov, A. Zewail, and M. Bernardi, Super-diffusion of excited carriers in semiconductors, *Nat. Commun.* 8, 15177 (2017).
- [25] J. Cho, T. Y. Hwang, and A. H. Zewail, Visualization of carrier dynamics in p(n)-type GaAs by scanning ultrafast electron microscopy, *PNAS* 111 (6) 2094-2099 (2014).
- [26] J. Sun, V. A. Melnikov, J. I. Khan, and O. F. Mohammed, Real-Space Imaging of Carrier Dynamics of Materials Surfaces by Second-Generation Four-Dimensional Scanning Ultrafast Electron Microscopy, *J. Phys. Chem. Lett.*, 6, 19, 3884–3890 (2015).
- [27] G. Ju, R. J. M. van de Veerdonk, E. B. Svedberg, K. W. Wierman, D. Weller, K. J. Howard, M. H. Kryder, S. Tamaru, J. T. Wolfson, and J. A. Bain, Sub-Nanosecond Non-Arrhenius Magnetic Switching in Perpendicular Multilayers, *IEEE Transactions on Magnetics*, Vol. 37, No. 4, (2001)
- [28] I. N. Krivorotov, N. C. Emley, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, Time-domain studies of very-large-angle magnetization dynamics excited by spin transfer torques, *Phys. Rev. B* 77, 054440 (2008).
- [29] J. Hérault, R. C. Sousa, C. Ducruet, B. Dieny, Y. Conraux, C. Portemont, K. Mackay, I. L. Prejbeanu, B. Delaët, M. C. Cyrille, and O. Redon, Nanosecond magnetic

switching of ferromagnet-antiferromagnet bilayers in thermally assisted magnetic random access memory, *J. Appl. Phys.* 106, 014505 (2009).

[30] A. Hoffmann, H. Schultheiß, *Mesoscale Magnetism*, *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, Vol. 19 (4) pp.253-263 (2015).

2. 走査電子顕微鏡

2.1 緒言

特殊相対性理論を考慮した電子の速度 v とエネルギー E の関係は、以下となる[1]。

$$m = m_e / \sqrt{1 - v^2/c^2} \quad (2-1)$$

$$mc^2 - m_e c^2 = E \quad (2-2)$$

h ($= 6.6 \times 10^{-34}$ Js) はプランク定数、 m_e ($= 9.1 \times 10^{-31}$ kg) は電子の静止質量、 c ($= 3.0 \times 10^8$ m/s) は光速を表す。式(2-1)と式(2-2)から、電子の波動性に基づくド・ブローイ波長 ($\lambda_e = h/(mv)$) は以下となる。

$$\lambda_e = \frac{h}{\sqrt{2 m_e E \left[1 + E/2 m_e c^2 \right]}} \quad (2-3)$$

電子のエネルギーに対するド・ブローイ波長をグラフにプロットしたものを図2-1に示す。エネルギー1 keV、10 keV、100 keV、1 MeVのド・ブローイ波長はそれぞれ38 pm、12 pm、3.7 pm、0.87 pmとなる。エネルギー<約10 keVの電子線については $E \ll m_e c^2$ となるため、式(2-3)のド・ブローイ波長は相対論補正が不要となり、以下の式で近似できる。

$$\lambda_e = \frac{h}{\sqrt{2 m_e E}} \quad (2-4)$$

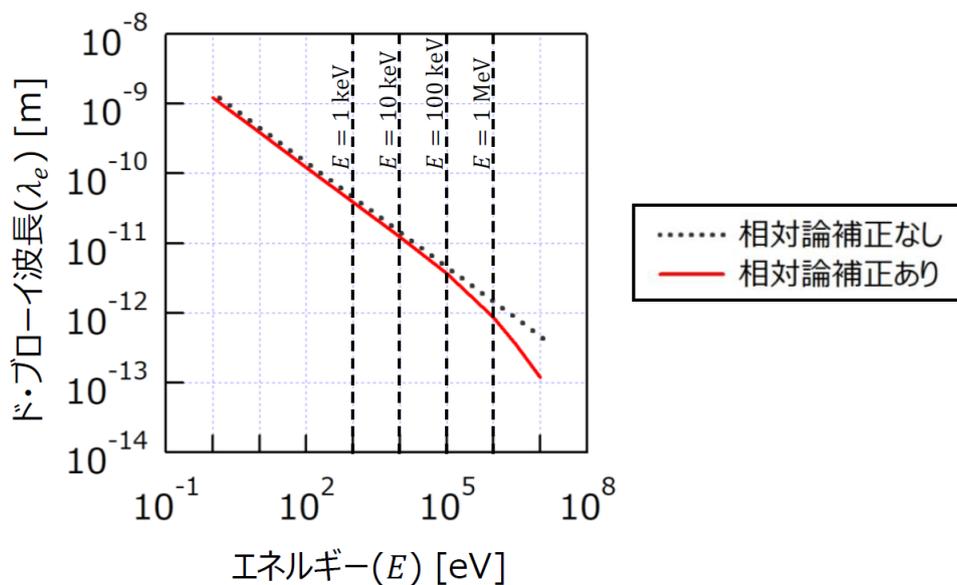


図 2-1. 電子線のド・ブローイ波長のエネルギー依存性

顕微鏡の分解能の理論限界は回折限界で決まっており、以下の式で表される[1]。

$$(2-5)$$

$$\delta = 0.61 \lambda / \sin \alpha$$

この式で λ は光の波長、 α は試料がレンズを見込む最大角度の半角である。電子顕微鏡の分解能は電子線のド・ブローイ波長を考える。電子顕微鏡では、波長 400~800 nm の可視光と比べて桁違いに短い波長の電子線を用いることで、光学顕微鏡では観察できない微小な構造物を計測できる。電子顕微鏡は、薄膜試料に対し高エネルギーの電子線を透過させる透過型 (Transmission electron microscope: TEM、Scanning transmission electron microscope: STEM) と、バルク試料の表面に集束させた電子線を走査する走査型 (SEM) があり、ユーザの観察目的や用途によって使い分けられている。

電子顕微鏡は形態観察ができるほか、電子線の照射方法や信号検出方法を工夫することで、組成、欠陥、電位、結晶方位、結合状態、磁性など、試料の様々な状態を局所的に高い空間分解能で解析する手段として利用することができる[2-4]。高エネルギーの電子線を用いる TEM や STEM の方が、SEM に比べて高い空間分解能が得られる。実際の電子顕微鏡で得られる空間分解能は、ド・ブローイ波長以外に、装置の電子光学系に依存する各種収差の影響を受ける。また、TEM や STEM では薄膜試料を観察するため、SEM と比べて試料内の電子散乱に起因する分解能劣化の悪影響が重畳されにくい。

光学レンズでは、凸レンズと凹レンズを組み合わせることによって対物レンズの球面収差や色収差を補正できる。一方、電子線で用いられる電磁界レンズは、電磁場が回転対称な分布の場合に得られるレンズ作用は原理的に凸レンズ作用のみであり、凹レンズ作用は得られないことが Scherzer によって理論的に証明されている[5]。これに対し近年、収差補正技術が発展し、多極子レンズを多段に組み合わせることで異方的に発生させた凹レンズ作用を利用した球面収差補正技術が TEM や STEM で一般的に利用されるに至っており[6]、収差補正技術を用いて得られる STEM の最高分解能は約 40 pm に達している[7]。

SEM におけるビーム径の評価方法については、次節で詳細を述べる。TEM、STEM、SEM の各装置の構成概要図を図 2-2 に示す。照射エネルギー 1 MeV 以上の透過電子顕微鏡は超高压電子顕微鏡と呼ばれている。世界最高の照射エネルギーは 3 MeV である[8]。一般的な TEM/STEM では 100~300 keV の照射エネルギーが利用されている。近年は、グラフェンや窒化ボロン (BN) などの軽元素で構成される試料に対するダメージレス観察の要請から、TEM/STEM においても低エネルギーの電子線を用いた観察が進んでいる[9-11]。

SEM においては、近年の試料極表面の観察ニーズの高まりや、試料ダメージ、帯電回避などの観点から照射エネルギーを約 1 keV 以下に設定する観察が広く利用されている[9]。試料に対する電子線の侵入深さは試料の材質に依存するが、照射エネルギー約 1 keV にすると表面から約 10 nm 以内の情報を得ることができる。SEM の用途は表面形態観察に留ま

らず、元素分析や結晶方位分析、STEM 観察などの用途では高い照射エネルギーが必要となるため、照射エネルギー0.1~30 keV で利用できるように装置が構成されている。次節では、SEM の観察原理について詳細を述べる。

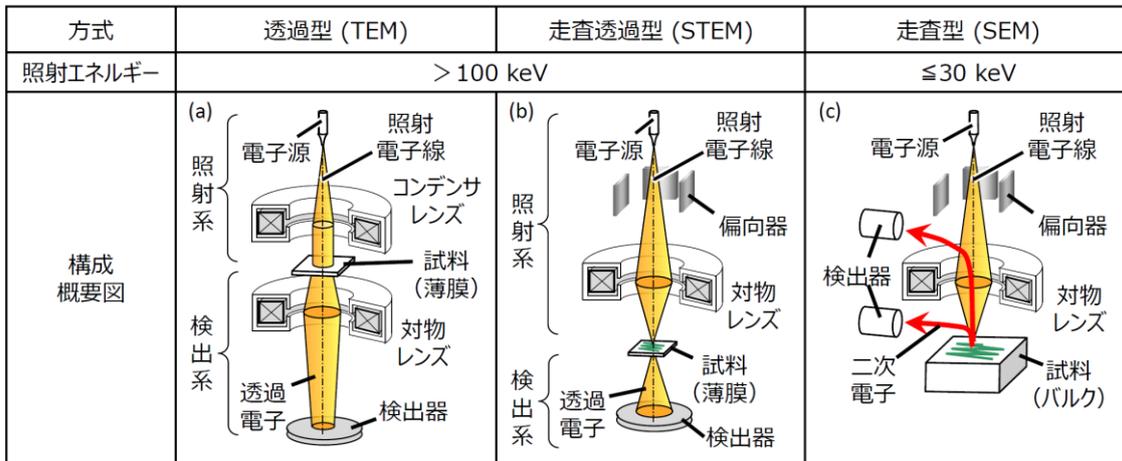


図 2-2. TEM、STEM、SEM の各方式の装置外観と構成概要図

2.2 原理

代表的な SEM の装置構成例を図 2-3 に示す[12]。電子源より放出された電子線が、コンデンサレンズや対物レンズなど、電子レンズによって集束されて試料上に照射される。照射電子線は軌道に設けられた偏向器により試料上で走査され、試料上の各照射点で放出された信号が検出器により検出される。試料上の各照射位置に対応する信号電子の検出強度が 2 次元画像としてマッピングされたものが SEM 像である。

偏向器の走査範囲を変えることで、SEM 像の観察倍率を変えることができる。高分解能用途で利用される SEM では最大倍率数 100 万倍での観察が可能なものがあり、照射エネルギー30 keV で 0.4 nm、照射エネルギー1 keV で 0.8 nm と、<1 nm の空間分解能が報告されている[13, 14]。

試料に対する電子線の最適な照射条件を得るために、対物レンズ以外に 2 つ以上のコンデンサレンズが搭載される[12]。絞りよりも電子源側に搭載されたコンデンサレンズを用いて、クロスオーバー位置を制御することで試料に照射されるプローブ電流量が制御される。また、対物レンズの前段に搭載されたコンデンサレンズのクロスオーバー位置を制御することで試料への照射開き角を制御される。試料上にフォーカスされる照射電子線のビーム径は、使用される SEM の対物レンズ方式や電子源の方式のほか、照射エネルギー、WD、プローブ電流、開き角などの観察条件に依存する。

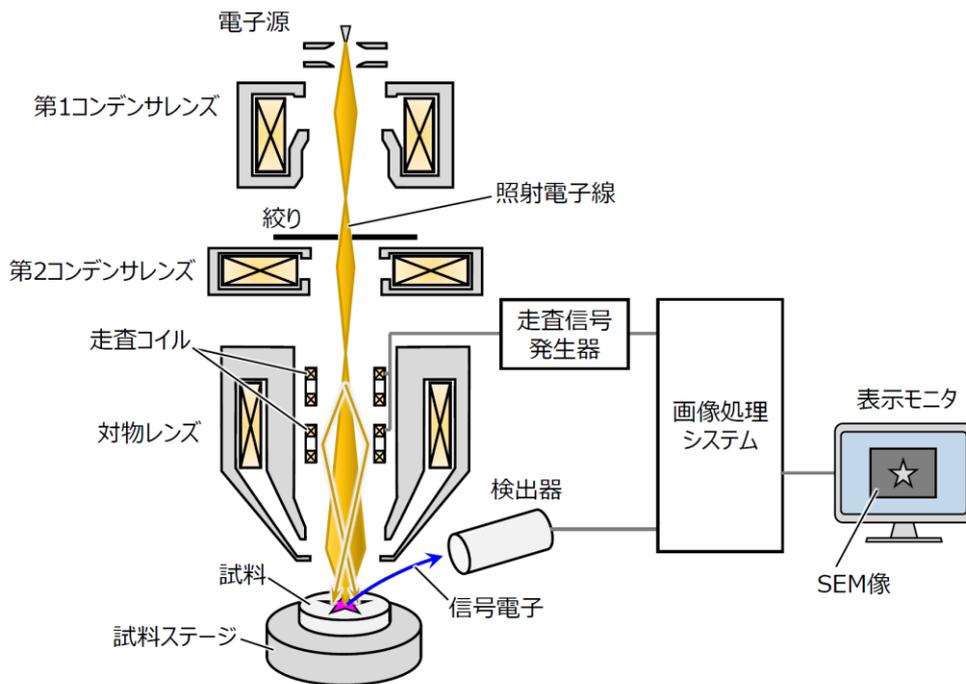


図 2-3. 一般的な SEM の装置構成[12]

試料に電子線を照射した時に放出される信号を図 2-4 に示す。一般的に SEM 観察に利用される信号は二次電子 (SE) や反射電子 (BSE) である[3, 4]。また、SE や BSE などの信号電子の検出による表面形態観察と並んで、試料表面の元素分析やその空間分布を計測するために特性 X 線を用いる元素分析装置が広く利用されている[3]。電子線照射に伴う試料内バンド間遷移過程を経て試料外に放出される電磁波を利用すること (カソードルミネッセンス) で結晶欠陥などを可視化できる[16]。この他にも、透過電子や吸収電流を計測することで、試料に固有の情報を得ることができる[15]。

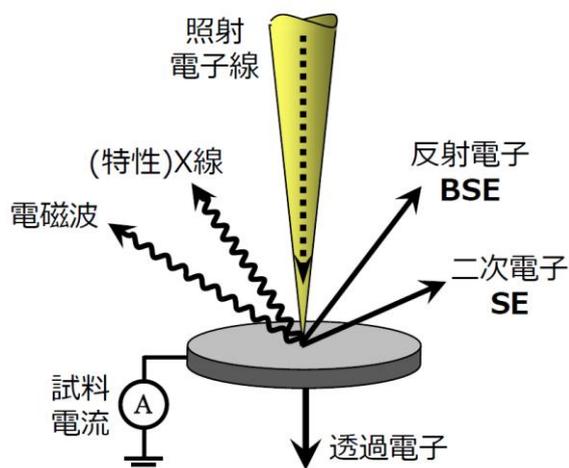


図 2-4. 電子線照射に伴う放出信号[15]

一般的な SE と BSE のエネルギー分布を図 2-5 に示す[3]。低エネルギーの二次電子 (SE) と高エネルギーの反射電子 (BSE) を別々に検出することで異なる情報が得られる。二次電子は試料に照射された電子線が試料内で非弾性散乱された際に励起された電子が試料外に放出されたものである。エネルギー数 eV 付近に発生量のピークを持ち、慣例的には発生する信号電子のうち、エネルギー 50 eV 未満を SE と呼ぶことが多い。SE は試料表面から約 10 nm 未満の深さで発生したものが試料外に脱出して検出されるため、SE を弁別して検出した SEM 像では、試料の表面形状や表面電位の情報が反映される[17]。一方、BSE は試料に照射された電子線が試料内で弾性散乱または非弾性散乱した結果、再び試料外に放出されたものである。BSE の最大エネルギーは照射電子線と同程度となり、照射エネルギー以下のエネルギー帯にブロードなエネルギー分布を持つ。BSE は放出位置の原子番号や結晶性に依存して発生量が変化するため、BSE を弁別検出した SEM 像では試料の組成や結晶方位の情報が反映される[18]。

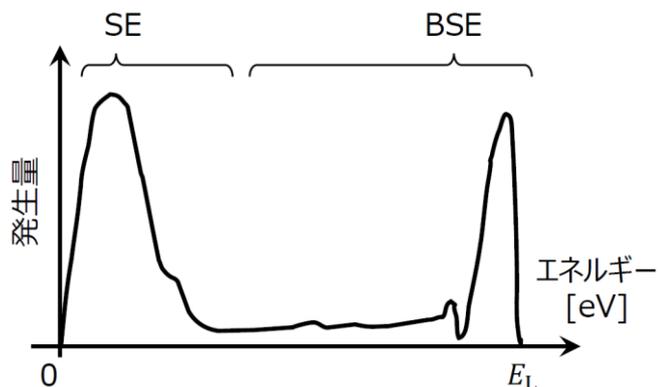


図 2-5. SEM における一般的な信号電子のエネルギー分布[3]

試料の帯電に起因するコントラストの除去や、BSE に起因する組成や結晶方位のコントラストを強調するために、減速電界型のエネルギーフィルタを用いて BSE の検出閾値エネルギーを制御する手法は SEM で一般的に利用されている。ただし、一般的な減速電界型のエネルギーフィルタのエネルギー分解能は数 100 eV 程度と大きいいため、SE や BSE のエネルギースペクトルを取得するにはエネルギー分解能が不足する。このため、信号電子のエネルギー分布を得るための専用の分光検出器を SEM に搭載して、SE や BSE のエネルギースペクトルを解析した報告がある[19-21]。特に文献[20]では、アナライザの通過エネルギー E_p に対する相対エネルギー分解能が $\Delta E/E_p = 0.0038$ (3.8%) の高エネルギー分解能の静電型エネルギーアナライザを用いて、照射エネルギー 1~2 keV で試料より仰角 37~53 度の角度範囲に放出された SE について取得したエネルギースペクトルに基づき、W、Cu、Au、Pt、Al、Si の表面の価電子帯の状態密度を解析し理論計算結果と高い精度で一致する結果が示されている。

照射電子線の電子数に対する試料から放出される SE の電子数の比は SE イールドと呼ばれる。SE イールド(δ_{SE})の照射エネルギー(E_L)依存性は図 2-6 のようなグラフとなることが知られている[17]。ただし、SE イールドが最大になる照射エネルギーと、その時のイールドの最大値は試料に依存する。

図 2-6 のグラフは定性的には以下のように解釈される。照射エネルギーが大きい条件では電子線が試料内部に進行するため、試料外に放出される SE が少ない。このため、 $\delta_{SE} < 1$ となり、試料表面は負帯電する。一方、照射エネルギーが小さい条件では試料表面部で電子線が散乱するため、試料外に放出される SE が多い。このため、 $\delta_{SE} > 1$ となり、試料表面は正帯電する。 $\delta_{SE} = 1$ となる照射エネルギー $E_{\delta_{SE}=1}$ では、試料に照射される電子の数と、放出される電子の数が釣り合い、帯電が進行しない条件に対応する。この条件に対応する照射エネルギーは試料に依存するが、いずれも数 100 eV~2 keV 程度の範囲にあることがわかっている[15]。この性質を利用することで、試料の表面帯電を抑制することができる。なお、照射エネルギーは厳密に $E_{\delta_{SE}=1}$ である必要はなく、 $E_{\delta_{SE}=1}$ 付近に設定すればよい。これは、 $E_{\delta_{SE}=1}$ よりも僅かに大きい照射エネルギーの場合は試料表面が負帯電し、 $E_{\delta_{SE}=1}$ よりも僅かに小さい照射エネルギーの場合は試料表面が正帯電することで、試料に対する照射エネルギーは $E_{\delta_{SE}=1}$ で平衡となるためである[15]。

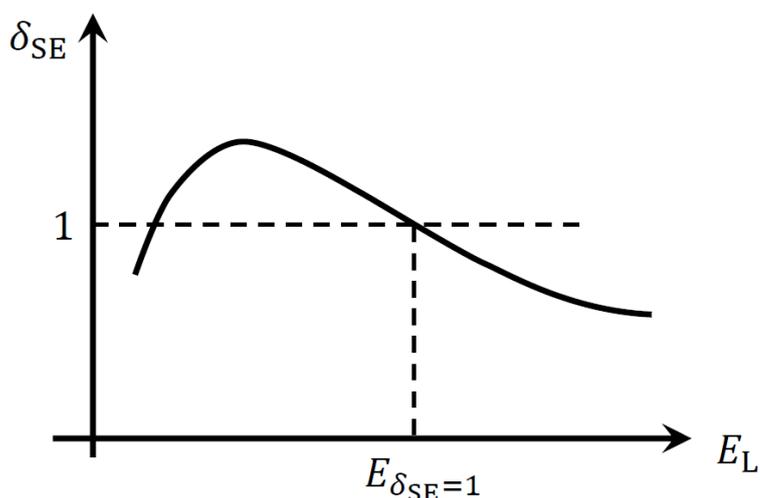


図 2-6. SE イールドの照射エネルギー依存性[17]

SEM 観察で照射エネルギーにより帯電抑制できる実例を、絶縁体を含む AlTiC 基板を試料とした場合について示す。FE-SEM SU8200 (日立ハイテック製) を用い、照射エネルギー 1~15 keV で取得した SE 像と BSE 像を図 2-7 に示す。各照射エネルギーで SE 像と BSE 像は同一視野である。AlTiC は Al_2O_3 の脆弱性を補うために、TiC を混合して焼結したもので、HDD の磁気ヘッドなどに利用されている材料である[22]。

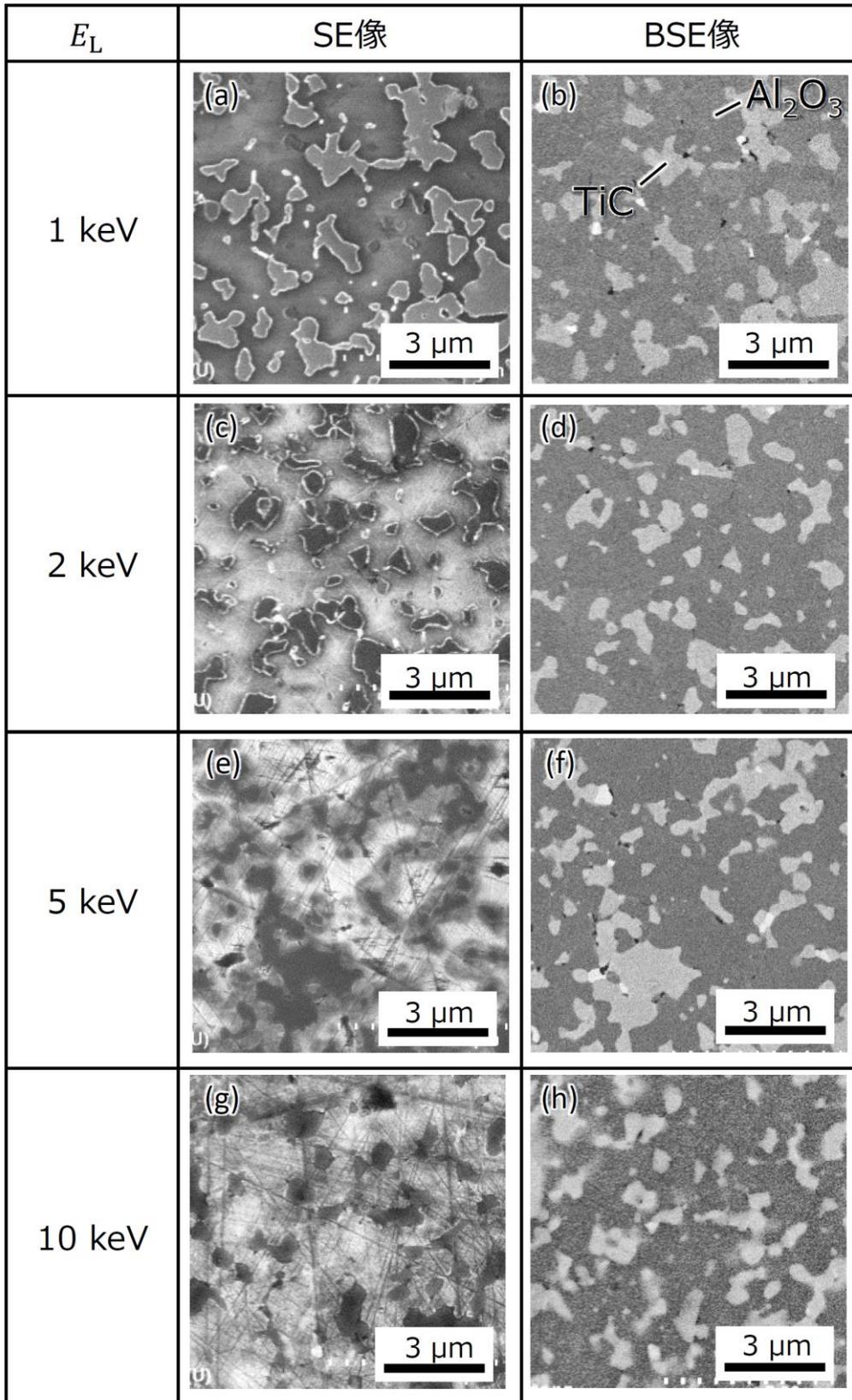


図 2-7. FE-SEM SU8200 で取得した AlTiC 基板の SEM 像
 照射エネルギー (a) (b) 1 keV、(c) (d) 2 keV、(e) (f) 5 keV、(g) (h) 10 keV
 (a) (c) (e) (g) SE 像、(b) (d) (f) (h) BSE 像

Al₂O₃ 部が絶縁体のため、SE 像では表面電位コントラストが観察されており、照射エネルギー1 keV と 2 keV 以上でコントラストが反転している。一方、BSE 像では照射エネルギーによらず島状に分布する TiC と下地の Al₂O₃ の違いが組成コントラストとして観察される。照射エネルギー10 keV の BSE 像では照射電子線が試料内部まで到達するため、下地に埋没した TiC が観察される。このため、試料最表面について、TiC と Al₂O₃ の分布状況を把握するには、照射エネルギー1~2 keV の観察が好ましい。また、照射エネルギー1 keV 付近にすることで絶縁部表面の帯電を抑制した条件で SEM 像を得ることができる。

2.3 低照射エネルギーの SEM 観察

電子線が試料に入射すると、試料内で弾性・非弾性散乱を起こす。SEM において、照射電子線は試料中で散乱を繰り返し、運動方向を変えると同時にエネルギーも次第に減少していく。この時、照射電子線が試料内でエネルギーを失うまでに侵入できる最大到達深度は飛程と呼ばれる。試料に照射エネルギー E_L で電子線を照射した際に、試料内の飛程 R は電子線を照射する試料の材質に依存し、以下の式(2-6)で表される[23]。

$$R \propto \frac{A}{\rho Z} (E_L)^B \quad (2-6)$$

この式で、 A は試料の平均分子量（平均原子量）、 ρ は試料の密度、 Z は試料の平均原子番号、 B は試料に依存する定数であり、照射エネルギー ≤ 10 keV では $B = 1\sim 1.5$ である[24]。電子線の照射エネルギーが大きくなると、飛程 R が増大する。

ところで、試料への電子線照射に伴い発生する SE は、発生機構によって SE₁、SE₂、SE₃ と分類される。図 2-8 に各 SE の発生機構の概要図を示す[3]。

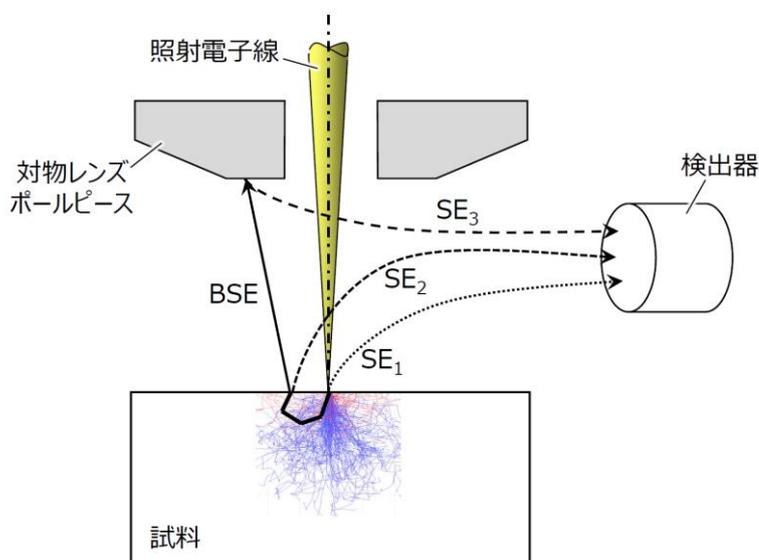


図 2-8. SE₁、SE₂、SE₃ の発生機構の概要図 [3]

SE₁は電子線照射位置で発生するSEである。通常のSEはSE₁のことを示す。SE₂やSE₃と区別する目的で、SE₁を純粹 (pure) なSEと呼ぶ場合もある。SE₂は、試料内で散乱したBSEが試料外に放出される際に、試料表面で非弾性散乱して放出される低エネルギー電子である。SE₃はBSEが対物レンズなど、試料周囲の構造物に衝突した際に発生する低エネルギー電子である。SE₁、SE₂、SE₃はいずれも同程度のエネルギーなので、識別して検出することができない。理想的には試料表層10 nm以内の領域から放出されるSE₁のみが検出される状況が好ましいが、実際にはBSE由来のSE₂やSE₃がSE₁と区別されずに検出される。このため、照射エネルギーが大きい条件では、SE₂やSE₃の混入によって、試料の内部情報が検出されることになる。以上より、飛程Rの増大に伴い信号電子の発生領域が増大し、試料内部の情報が重畳するため、試料の最表面のSEM像を得るには、低照射エネルギーに設定することが好ましい。

照射エネルギーや材料に依存する電子線の試料内の侵入深さの違いはモンテカルロシミュレータを用いることで計算できる[25, 26]。例として、銅に対し照射エネルギー20 keVと1 keVの場合について、試料内で電子線が散乱の様子を計算した結果を同一視野で取得した銅メッシュのSE像とともに図2-9に示す。

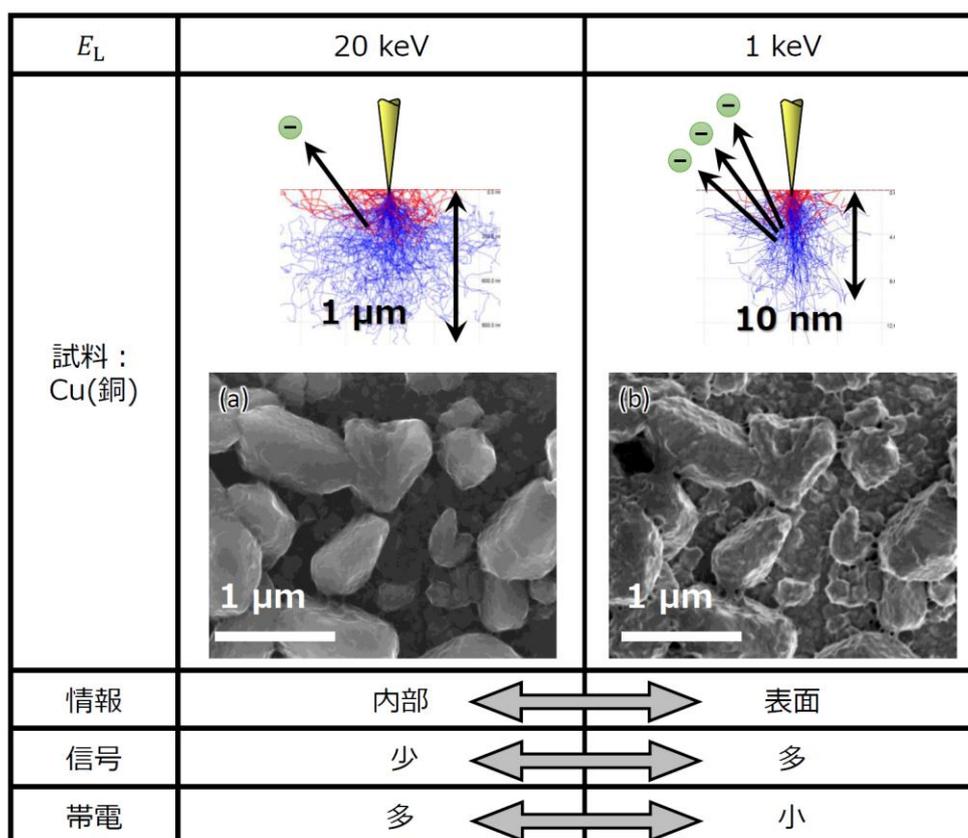


図 2-9. 照射エネルギー(a)20 keV、(b)1 keVの銅メッシュ表面のSEM像と対応するモンテカルロシミュレーションの計算結果

図 2-9 内に示す試料内の電子散乱の様子は、モンテカルロシミュレータ CASINO[25]による計算結果である。青色の電子軌道は試料内に留まった電子、赤色の電子軌道は試料外に放出された電子の軌道を示す。照射エネルギー 20 keV の場合と比べて 1 keV の SEM 像では銅メッシュ表面の細かい構造が観察されており、より表面敏感であることがわかる。低照射エネルギーでの SEM 観察は、試料表面数 10 nm 以内の情報が得られることに加え、試料によっては電子線照射に伴うダメージや帯電の悪影響を低減することができる。

2.4 照射ビーム径

照射電子線が対物レンズの中心を通過するように軌道が調整された条件では、軸上収差を考慮することで SEM のビーム径 δ_p を見積もることができる。最も簡単な方法は、ビーム径に寄与する各収差の 2 乗和を計算する以下の式(2-7)を用いるものである[27]。

$$\delta_p = \sqrt{(\delta_D)^2 + (\delta_S)^2 + (\delta_C)^2 + (M_{\text{total}} \delta_o)^2} \quad (2-7)$$

式(1)の右辺の第一項 (δ_D) は回折収差、第二項 (δ_S) は球面収差、第三項 (δ_C) は色収差、第四項 ($M_{\text{total}} \delta_o$) は試料上に投影された光源径を表す。ここでは簡単のために δ_D 、 δ_S 、 δ_C を考慮したビーム径について考察する。各収差について最終段のレンズから試料上にフォーカスされるまでの軌道を模式的に描いたものを図 2-10 に示す。

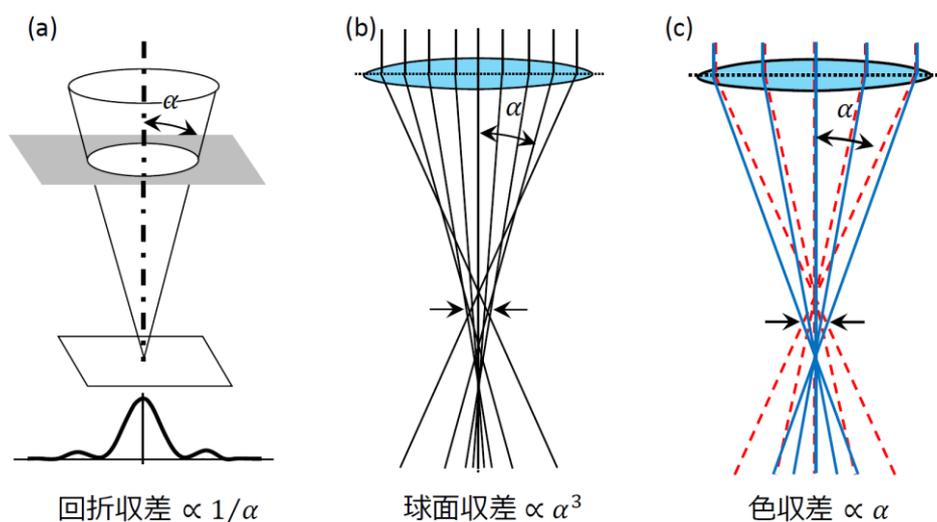


図 2-10. 収差の発生原理、(a) 回折収差、(b) 球面収差、(c) 色収差 [28]

式(2-7)の各項は試料上の照射開き角 α_s に依存するため、スポット径 δ_p の最適値を考える場合は α_s を含む式に変形すると見通しが良い。 δ_D 、 δ_S 、 δ_C の α_s 依存性は以下となる。

$$\delta_D = 1.22 \lambda_e / \alpha_s \quad (2-8)$$

$$\delta_S = 0.5 C_{sp} \alpha_s^3 \quad (2-9)$$

$$\delta_c = C_{ch} \frac{\Delta E}{E_L} \alpha_s \quad (2-10)$$

式(2-8)の回折収差に含まれる λ_e は式(2-3)のド・ブローイ波長である。SEM で照射エネルギーが 10 keV 以下の場合には相対論補正なしの式(2-4)を用いる。絞りの通過に伴い回折の影響を受けたビーム強度分布はエアリーパターンであり、式(2-8)は最小暗環の半径を与える式に対応する。

式(2-9)の球面収差 (Spherical aberration) はレンズの軸上を通過した電子線と軸外を通過した電子線で集束位置が異なることに起因するボケ量である。光軸から遠い軌道ほどレンズ主面に近い位置に集束する。球面収差係数 C_{sp} は対物レンズの焦点距離に依存し、長さの単位を持つ定数である。対物レンズの焦点距離が長い照射条件ほど C_{sp} が大きくなる。

式(2-10)の色収差 (Chromatic aberration) は電子線のエネルギーに依存して集束位置が異なることに起因するボケ量である。高エネルギーの電子はレンズから遠くに、低エネルギーの電子はレンズの近くに集束する。 ΔE は電子源のエネルギー幅、 E_L は試料への照射エネルギーを表す。色収差係数 C_{ch} は対物レンズの焦点距離に依存し、長さの単位を持つ定数である。対物レンズの焦点距離が長い照射条件ほど C_{ch} が大きくなる。この点については、次節で詳細を述べる。

球面収差係数 $C_{sp} = 1 \text{ mm}$ 、色収差係数 $C_{ch} = 1 \text{ mm}$ 、エネルギー幅 $\Delta E = 0.3 \text{ eV}$ の場合について、式(2-7)を用いて光源径を無視して計算した照射エネルギー 1 keV と 10 keV の場合のビーム径の照射開き角依存性をプロットした結果を図 2-11 に示す。

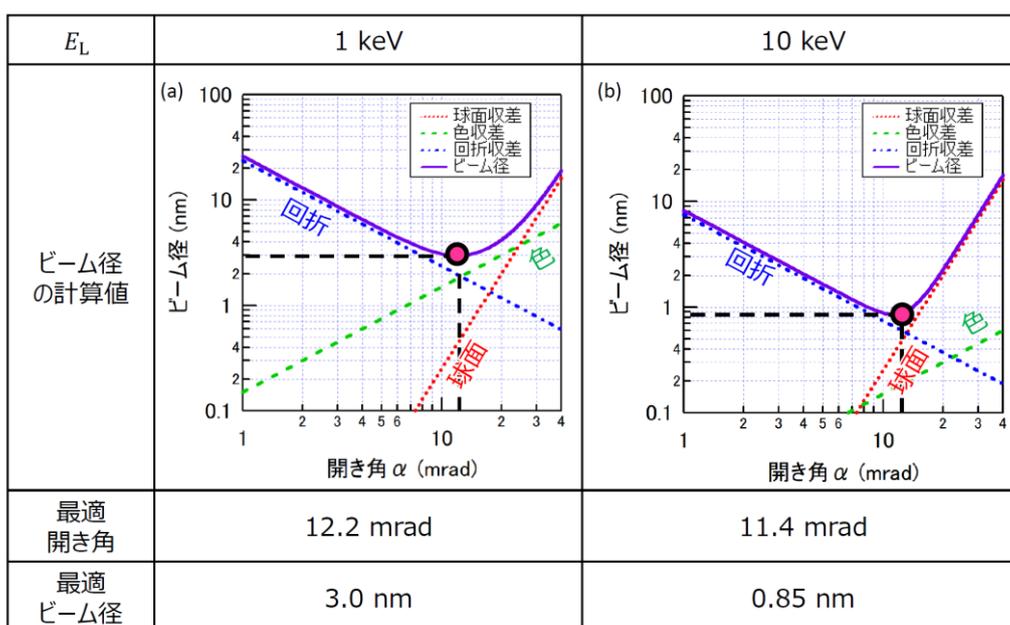


図 2-11. $C_{sp} = 1 \text{ mm}$ 、 $C_{ch} = 1 \text{ mm}$ 、 $\Delta E = 0.3 \text{ eV}$ の場合について、球面収差、色収差、回折収差の 2 乗和で計算した照射ビーム径の開き角依存性
照射エネルギー (a) 1 keV、(b) 10 keV

照射エネルギー E_L に対して、回折収差は $(E_L)^{-1/2}$ 、色収差は E_L の依存性を持つ。このため、ビーム径の最小値を与える最適開き角は照射エネルギー E_L に依存する。一般的な傾向として、高い照射エネルギー域の最適照射条件は回折収差と球面収差の交点付近の開き角で得られるのに対し、低い照射エネルギー域の最適照射条件は回折収差と色収差の交点付近の開き角で得られる。特に低照射エネルギーの最適開き角の条件では $\delta_C > \delta_S$ となり、回折収差は電子線の波動性に起因するボケ量のため電子顕微鏡で一般的に利用される円形の開口絞りを利用する限りは改善の余地がない。このため、SEM の低照射エネルギー観察においてビーム径を小さくするには色収差の低減が重要となる。

2.5 色収差

光学における色収差は異なる波長の光線が 1 点に集光しないことに起因するボケ量を指す。このアナロジーから、電子光学における色収差は電子線のエネルギーの違いによって生じるボケ量を指す。試料に対し開き角 α_s で照射されるエネルギー E_L の電子線を考える (図 2-12)。対物レンズ主面と物点の距離を a 、対物レンズ主面と像点の距離を b 、対物レンズの焦点距離 f はレンズの結像公式から $1/f = 1/a + 1/b$ から求めることができる。また、この対物レンズの横倍率は $M = b/a$ である。

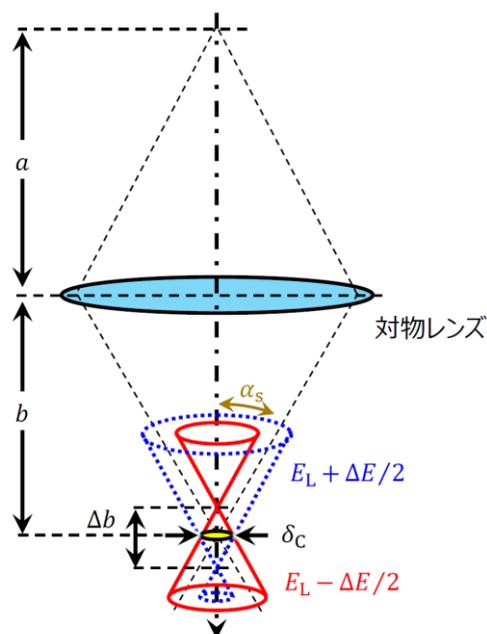


図 2-12. 色収差の発生原理

電子源のエネルギー幅 ΔE に基づきエネルギー $E_L \pm \Delta E/2$ の電子線を考えて、光軸方向の像面位置のずれ量を Δb とする。色収差 δ_C は像面位置のずれ量 Δb と開き角 α_s を用いて、以下の式で表される。

$$\delta_C = \Delta b \alpha_s \quad (2-11)$$

物点と像点がレンズ主面から十分に離れており、焦点距離 f が十分に長い薄肉磁界レンズでエネルギー E_L の電子線がフォーカスされる場合、 E_L と f の間には以下の関係式が成り立ち、 E_L と f は比例する[10]。以下の式で m_e は電子の静止質量、 e は電荷素量、 $B_z(z)$ は光軸方向の軸上磁場強度分布を表す。

$$f = \frac{8m_e E_L}{e} \left(\int B_z^2 dz \right)^{-1} \propto E_L \quad (2-12)$$

この式から電子線のエネルギーが ΔE 変動した時のフォーカス位置の光軸方向の変動量 Δf は以下となる。

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{\Delta E}{E_L} \quad (2-13)$$

$1/f = 1/a + 1/b$ の関係から $a =$ 一定のもとで像面位置のずれ量 Δb とフォーカス位置のずれ量 Δf の関係は以下となる。

$$\Delta b = b^2 \times \frac{\Delta f}{f^2} = \frac{b^2 \Delta E}{f E_L} \quad (2-14)$$

式(2-11)と式(2-14)から以下の式が得られる。

$$\delta_C = \frac{b^2 \Delta E}{f E_L} \alpha_s \quad (2-15)$$

式(2-10)との比較から、式(2-15)の右辺の $\frac{\Delta E}{E_L} \alpha_s$ の係数は色収差係数 C_{ch} である。レンズ結像公式とレンズ倍率の式から $b = (1 + M)f$ が成立つので、変形すると C_{ch} は以下となる。

$$C_{ch} \equiv \frac{b^2}{f} = (1 + M)^2 f \quad (2-16)$$

電子光学シミュレータを用いて、肉薄レンズと見なせる磁界型レンズについて、対物レンズ主面-物点間距離 a と対物レンズ主面-像点間距離 b を変えて色収差係数 C_{ch} と焦点距離 f を計算し、 C_{ch} と式(2-16)の右辺 $((1 + M)^2 f)$ の関係を調べた結果を図 2-13 に示す。

レンズ主面-物点間距離 a は 50 mm、100 mm、200 mm、500 mm とし、各条件で a を固定して計算し、式(2-16)の関係式が成り立つことを確認した。なお、実際の SEM では対物レンズの横倍率は $M \ll 1$ の条件で使用される。このため、式(2-16)は $C_{ch} \sim f$ となり、色収差係数は実質的に対物レンズの焦点距離と同程度となる。このため、低加速 SEM で高分解能を得るために色収差を低減する 1 つの方法として、短焦点距離の対物レンズの適用が有効である[29]。

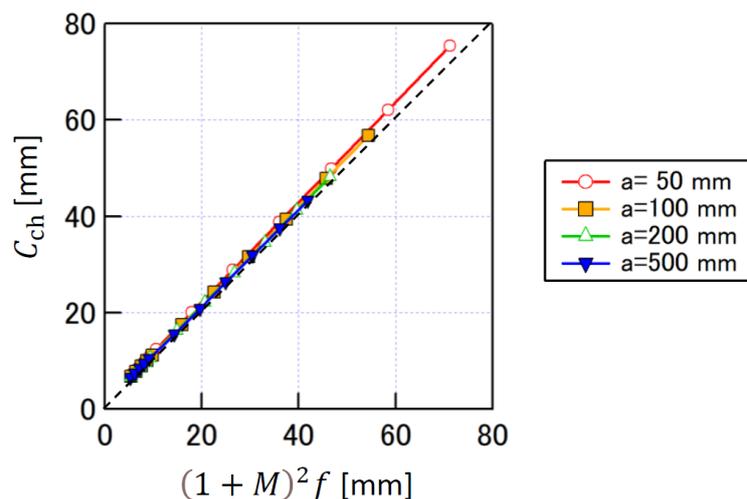


図 2-13. 磁界型の肉薄レンズの $(1 + M)^2 f$ に対する色収差係数 C_{ch} の計算結果

2.6 色収差の低減手法

本節では、式(2-10)で表される色収差の低減手法として、収束角を大きくするため対物レンズを短焦点化する手法と、照射電子線の持つエネルギー幅を低減する手法について示す。

2.6.1 短焦点化による色収差の低減

現行の SEM で利用されている各対物レンズについて、軸上磁場分布とレンズ磁場の形成位置を模式的に表したものを図 2-14 に示す[29]。

対物レンズ	アウトレンズ型	セミインレンズ型	インレンズ型
漏れ磁界	なし	あり	あり
レンズ配置 & 検出系			
レンズ磁界分布			

図 2-14. 各種対物レンズの軸上磁場分布とレンズ磁場の形成位置の模式図[11]

図 2-14 の左側に示すアウトレンズ型対物レンズは、試料周囲の空間を比較的自由に使用できるため、SE 検出器以外の分析装置と組合せた利用が容易である。また、磁性体試料を観察する場合など、試料周囲に磁場漏洩したくない場合にも利用される。試料上で発生する信号電子のうち、SE は試料室検出器で検出され、BSE は対物レンズ下面に配置した半導体検出器などが用いられる。

図 2-14 の右側に示すインレンズ型対物レンズと中央に示すセミインレンズ型対物レンズは、いずれも試料に磁場漏洩する方式の対物レンズである。インレンズ型は TEM や STEM と同様の対物レンズ磁路の形状をしており、SEM 向けの対物レンズ形状としては最も焦点距離を短い構成となる。ただし、試料はポールピースの内側に配置する必要があるため、試料サイズは小さい物に限定される。これに対しセミインレンズ型は、試料周囲の空間自由度が高く、比較的大きいサイズの試料にも対応できる。インレンズ型とセミインレンズ型はどちらも試料上で発生する SE や BSE などの信号電子は、照射電子線を試料上に集束するための磁場によって対物レンズの上部に巻上げられる。特に低エネルギーの SE は、光軸に対し電界と磁界が直交配置しているウィーンフィルタ (ExB) によって軸外偏向されて検出される。

図 2-14 の下段に示すように、対物レンズの物点が無限遠にあるものとする、レンズ主面と試料の距離が焦点距離に対応する。図 2-14 からわかるように、アウトレンズ、セミインレンズ、インレンズの順に焦点距離が短くなる。磁界レンズ単独で最短 WD に設置した試料上に集束した場合の色収差係数の大小関係も同様となる。試料位置が対物レンズより漏洩したレンズ磁場に近いほど構成ほど低照射エネルギー域で高い空間分解能を得やすいことがわかる。

低照射エネルギーの照射条件で対物レンズをさらに短焦点化するには、対物レンズと試料の間に照射電子線に対する減速電界を分布させる、電磁界重畳型の対物レンズを用いる手法が有効である[25-27]。磁界レンズと電界レンズを利用した対物レンズについて、電子線の集束作用を調べると、減速電界レンズ作用によって、磁界レンズが短焦点化される構成が好ましい。このような電磁極構成とした場合、磁界レンズ場の中を高エネルギーで通過した電子線が試料直前で減速して集束される。

2.6.1 電子源単色化による色収差の低減

本章でははじめに色収差の低減手法として、色収差係数が対物レンズの焦点距離と同程度になることを示し、焦点距離の短い対物レンズを実現するために、電子線を試料上に集束させるためのレンズ電磁界をできるだけ試料近傍に形成することが有効であることを示した。電子源から放出された電子線のエネルギーのゆらぎはエネルギー幅と呼ばれ、 ΔE と表記さ

れる。低照射エネルギーの SEM 観察でさらに高い空間分解能を得るには、エネルギー幅 ΔE の小さい電子源を選択することが有効である。現在、連続電子線の電子源として電子顕微鏡で利用されている電子源は、大きく分けると熱電子放出型のタングステン (W) フィラメント、 LaB_6 と、CFE 型、Schottky 型の 4 種類である[30]。各電子銃について、構成や特長を以下で説明する。

熱電子放出型電子源のタングステン (W) フィラメントと LaB_6 を用いた電子銃構造を図 2-15. (a)(b)に示す。

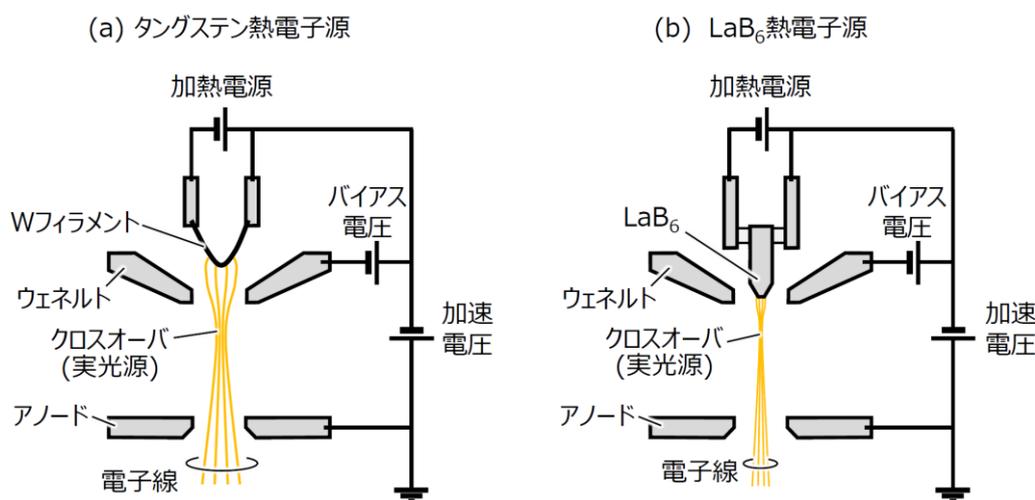


図 2-15. 熱電子放出型電子源の電子銃構造
(a) タングステン (W) フィラメント[30]、(b) LaB_6 [31]

熱電子放出型の電子源では、陰極の加熱により電子のエネルギー分布を高エネルギー側に広げて、エネルギーが真空準位を上回り真空領域に放出される電子を利用する。陰極の加熱に伴いエネルギー分布が広がるため、熱電子放出型電子源のエネルギー幅は 1 eV よりも大きい。熱電子放出型の電子源から放出される電子線の電流密度は以下の Richardson-Dushman の式で与えられる[24]。

$$J = AT^2 \exp\left(-\frac{e\phi_w}{k_B T}\right) \quad (2-17)$$

この式で、 A は物質に固有な Richardson 定数、 T は絶対温度、 ϕ_w は仕事関数、 k_B はボルツマン定数である。熱電子放出型電子源は仕事関数 ϕ_w が小さく、高融点かつ高温で安定な材料を用いることが好ましい[31]。熱電子放出型電子源では、広い面積から広い角度で電子が放出されるため、電子放出領域を制限するためにウェネルトを設け、ここに負電圧を印加して発生する電界レンズにより電子線が集束される。電子放出領域の表面には強い電界を印加しないため、真空領域に放出された電子線は空間電荷制限条件で利用される[30]。この条件

で利用される電子源はノイズが小さく安定な特長を持つ一方、ウェネルトの直下に形成される直径約 $1\ \mu\text{m}$ のクロスオーバが実光源となるため、後述する CFE 電子源や Schottky 型電子源と比べて輝度が小さい[30]。熱電子銃として利用する場合について W フィラメントと LaB₆ の仕事関数 ϕ_w と加熱温度 T_f を比べると、W フィラメントは $\phi_w = 4.5\ \text{eV}$ 、 $T_f = 2400\ \text{K}$ 、LaB₆ は $\phi_w = 2.7\ \text{eV}$ 、 $T_f = 1800\ \text{K}$ である[24]。このため、仕事関数が小さい LaB₆ の方が W フィラメントと比べて約 1 桁大きい輝度が得られる。

次に、CFE 電子源と Schottky 電子源の電子銃構造を図 2-16. (a)(b)に示す。

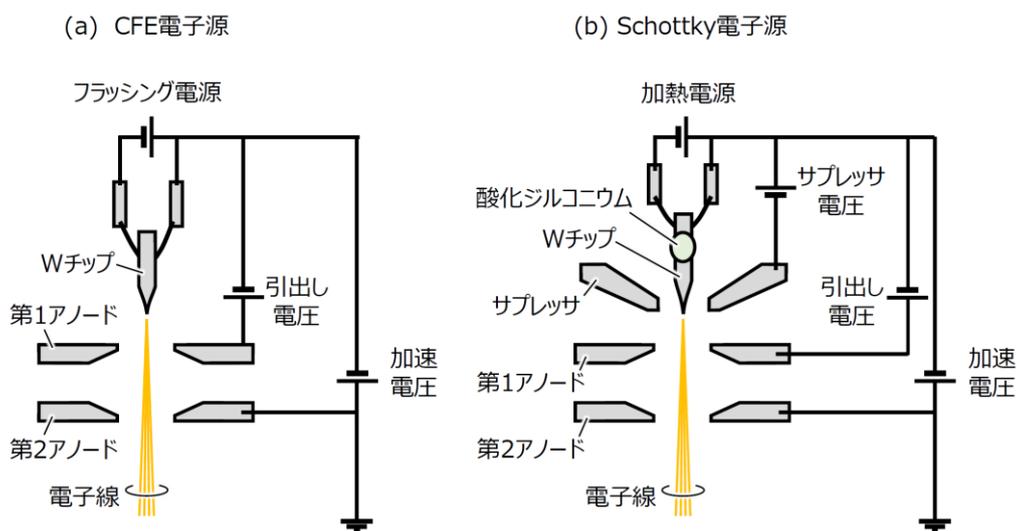


図 2-16. 電界放出型電子源の電子銃構造 (a) CFE 型、(b) Schottky 型 [30]

CFE 電子源では、金属表面に数 V/nm 程度の強電界を印加することで金属表面の電子に対する電位障壁の厚みがサブ nm となり、トンネル効果で真空領域に放出される電子を利用する。電界放出型の電子源から放出される電子線の電流密度は、以下の Fowler-Nordheim の式で与えられる[24]。

$$J = \frac{AF^2}{\phi_w} \exp\left(-B \frac{\phi_w^{3/2}}{F}\right) \quad (2-18)$$

この式で A と B は定数、 F は陰極表面の電界強度である。電界放出型電子源は仕事関数 ϕ_w が小さく、陰極の表面電界 F を大きくして利用することが好ましい。なお、CFE 電子源では陰極は加熱されないが、電子放出に伴うジュール熱などによる温度上昇が生じるため、高融点の材料が必要となる[30]。現行の CFE 電子源では先端径約 $100\ \text{nm}$ に尖らせた針状電極の先端部が(310)面のタングステン (W) の単結晶が利用される。これは、(310)面の仕事関数 ($\phi_w = 4.3\ \text{eV}$) が他の面よりも低いためである。W(310)を用いた CFE 電子源はエネルギー幅が $0.3\ \text{eV}$ と小さく、モノクロメータと組合せることなく、単独で利用される電

子源の中で比べると、実用化されているものの中では最も単色性が良い。また、電子軌道に基づき CFE 電子源の見かけ上の光源サイズ（仮想光源径）を見積もると 3 nm 程度と非常に小さく、実用化されている電子源の中では最も高輝度な電子源である。

CFE 電子源のトンネル効果は陰極の表面状態に敏感であるため、CFE 電子源を安定的に利用するには陰極の周囲を極高真空にする必要がある。また、CFE 残留ガスが陰極表面に吸着すると放出電流量が変動するため、陰極を加熱するフラッシングを実施して吸着ガスを脱離する。後述する Schottky 電子源と比べると CFE 電子源は陰極表面へのガス吸着に伴う放出電流の不安定性が課題とされることが多いが、陰極周囲の真空度を極高真空に維持する技術が確立されたことで安定性が改善され、最高分解能の SEM に搭載されている[13]。

Schottky 電子源では先端径が数 100 nm～1 μm の針状電極の先端部が(100)面のタングステン (W) の単結晶が利用され、先端部に電界を印加しながら 1800 K 程度に加熱して放出される電子を用いる[30]。陰極の根元に酸化ジルコニウム (ZrO) の拡散源を備え、加熱によって陰極先端部に ZrO を表面拡散させると、W(100)表面に Zr-O の電気二重層が形成されて仕事関数が低下する[32]。陰極を加熱して利用する Schottky 電子源のエネルギー幅は CFE 電子源よりも大きく、0.6～0.8 eV 程度となる。また、Schottky 電子源の輝度は CFE 電子源と比べて約 1 桁小さい。一方で Schottky 電子源は放出電流の高い安定性が特長であり、24 時間の安定稼働が必要とされる半導体検査用の測長 SEM やレビュー SEM の電子源には Schottky 電子源が利用されている[15]。オージェ電子分光装置のほか、SEM を用いた元素分析や結晶方位分析など、試料に対し大きいプローブ電流を長時間安定的に照射する必要がある場合に優位な電子源である。また、Schottky 電子源は陰極表面のガス吸着に対する電流変動が小さいため、試料周囲を低真空にして観察する SEM にも搭載される。

以上に示したように電子顕微鏡に搭載される電子源は、輝度やエネルギー幅など観察性能に関わる基礎的な特性だけでなく、安定性、ノイズ、寿命（コストパフォーマンス）なども重要である。各種電子源のエネルギー幅と後述する換算輝度を表 2-1 にまとめる[30]。

表 2-1. 各種電子源のエネルギー幅と換算輝度[30]

電子源	Wフィラメント	LaB ₆	Schottky	CFE
方式	熱電子放出	熱電子放出	Schottky放出	電界放出
エネルギー幅 (ΔE) [eV]	2	1.5	0.4-0.8	0.2-0.4
換算輝度 (β _V) [A/m ² /sr/V]	～1x10 ⁴	～1x10 ⁵	～2x10 ⁷	～3x10 ⁸

熱電子放出型の電子源と比べ、Schottky 電子源や CFE 電子源はエネルギー幅が小さく、低照射エネルギーの SEM 観察で優位な電子源である。球面収差係数 $C_{sp} = 1 \text{ mm}$ 、色収差係数 $C_{ch} = 1 \text{ mm}$ 、照射エネルギー 1 keV の場合について、エネルギー幅 $\Delta E = 0.3$ (CFE)、 0.6 (Schottky)、 1.5 (LaB₆)、 2 eV (W フィラメント) の 4 条件についてビーム径の開き角依存性を計算した結果を図 2-17 に示す。

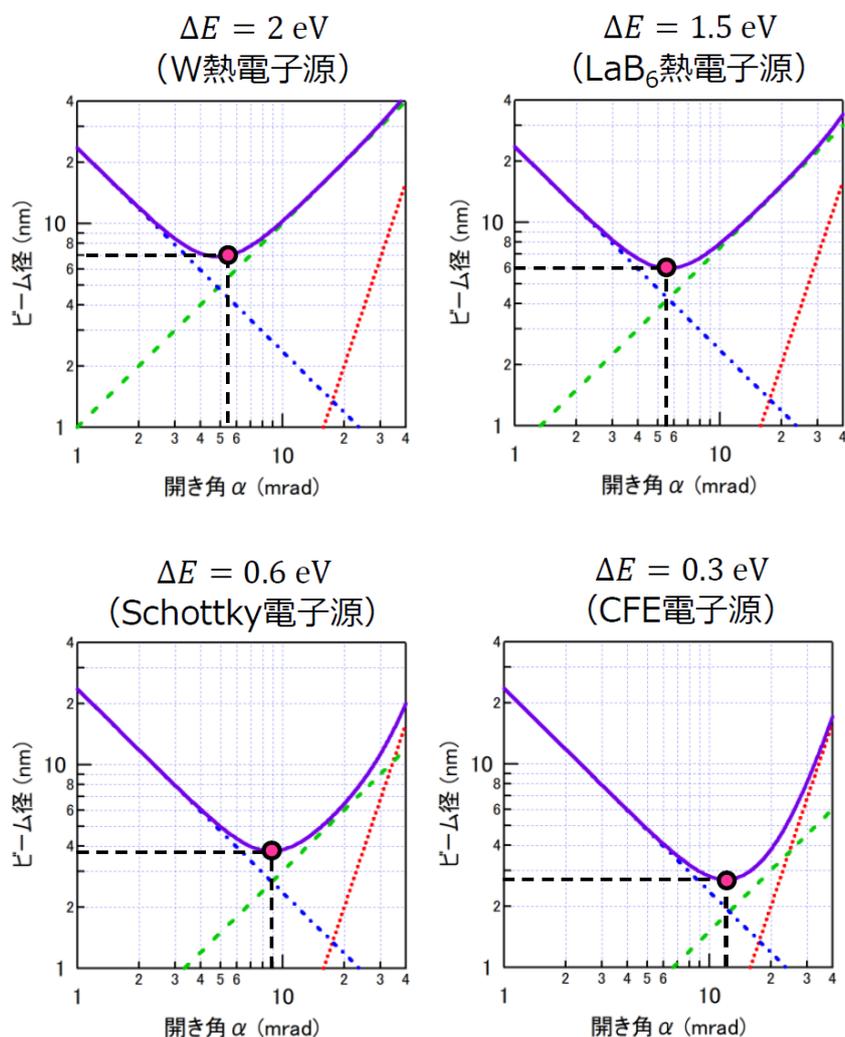


図 2-17. 球面収差、色収差、回折収差の 2 乗和で計算した最適ビーム径の ΔE 依存性、 $C_{sp} = 1 \text{ mm}$ 、 $C_{ch} = 1 \text{ mm}$

低照射エネルギーでは、エネルギー幅の低下に伴い最適ビーム径が改善するとともに、最適開き角が増大する。同様の計算を照射エネルギー 10 keV で実施し、最適ビーム径の ΔE 依存性を比較した結果を図 2-18 に示す。 ΔE の違いによる最適ビーム径の変化は照射エネルギー 10 keV よりも照射エネルギー 1 keV の方が大きい。このため、エネルギー幅が小さい Schottky 電子源や CFE 電子源を用いることによる色収差の低減は低照射エネルギーでの SEM 観察で有効である。

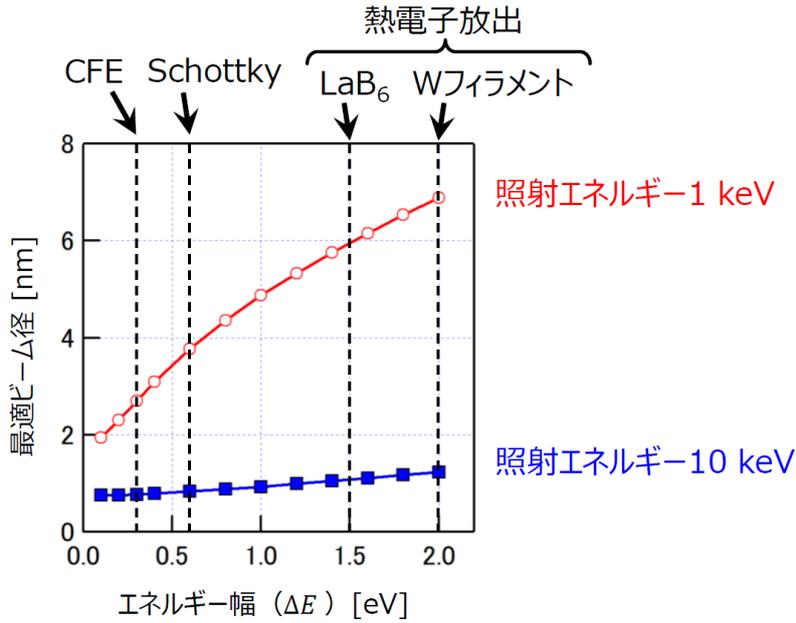


図 2-18. 球面収差、色収差、回折収差の 2 乗和で計算した最適ビーム径の ΔE 依存性、 $C_{sp} = 1 \text{ mm}$ 、 $C_{ch} = 1 \text{ mm}$

2.7 電子銃輝度

電子源の輝度は単位立体角、単位面積あたりに放出される電流量として表され、以下の式で定義される[26]。

$$\beta = \frac{I}{S \Omega} = \frac{I}{\pi^2 r_0^2 \alpha_0^2} \quad (2-19)$$

この式で、 I は電子源より放出された電流、光源面積 $S = \pi r_0^2$ 、立体角 $\Omega = \pi \alpha_0^2$ である。放出源の面積と立体角が小さく、放出される電流量の大きいものほど高輝度な電子源と言える。電子線の経路上で加減速されると電子線が電界のレンズ作用を受けるため、非相対論領域ではエネルギーの異なる電子線の輝度を比較するため加速電圧 V_0 (電子線のエネルギーは eV_0) で規格化した、以下の式で定義される換算輝度を用いることがある。

$$\beta_V = \frac{I}{\pi^2 r_0^2 \alpha_0^2 V_0} \quad (2-20)$$

なお、式(2-20)の右辺の分母の平方根 ($\pi r_0 \alpha_0$) は回転対称系 (r, α) の位相図上でのエミッタンスを表す[23]。横方向のエミッタンスは、電子線の進行方向と直交する方向に対する、電子線の位相空間的な広がり数値化したものである。表 2-1 に示す各種電子源の換算輝度から、熱電子放出型の電子源と比べ、Schottky 電子源や CFE 電子源は桁違いに高輝度な電子源であることがわかる。

図 2-19(a)(b)に示すように、絞りを通過した電流量 I_p 、直径 $2r_{vs}$ の仮想光源から開き角 α_{vs} で射出された電子線を単一のレンズで試料上に集束する場合を考える。レンズの横倍率は $M = b/a$ である。なお、 m 個のレンズで構成される場合は、 k 番目のレンズの横倍率を M_k として、 $M = M_1 \times M_2 \times \dots \times M_m$ として考えれば、同様の結果となる。試料上に投影される光源径のスポットの直径を $2r_s$ 、照射開き角を α_s とする。また、図 2-19 では物点から像点までの電子のエネルギーは一定とする。

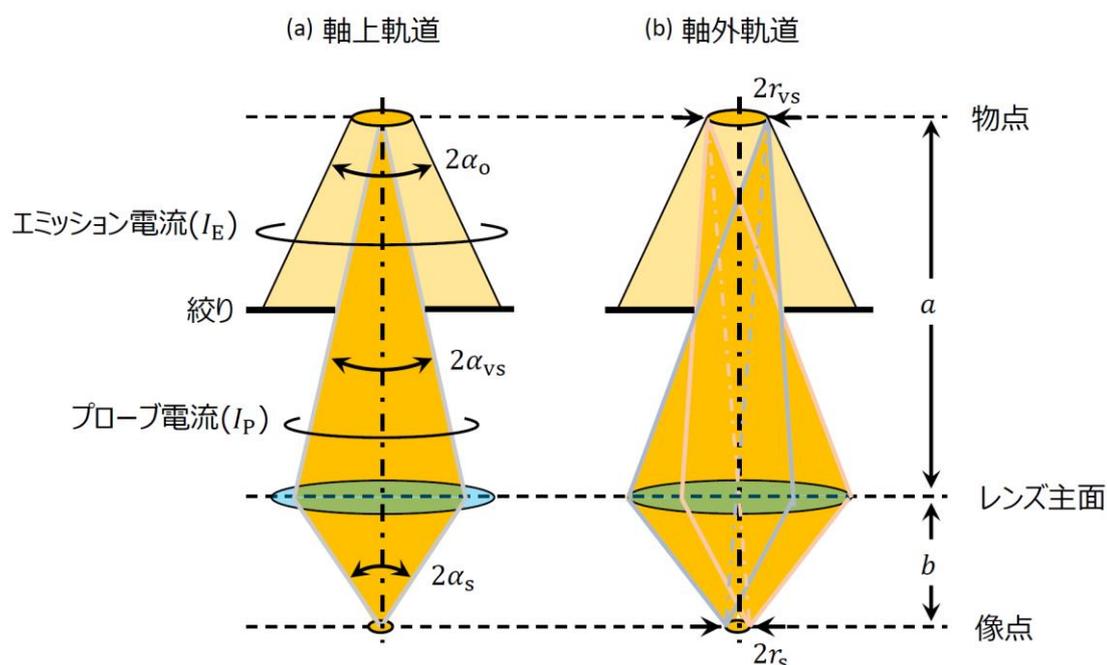


図 2-19. 有限径の光源から射出され単一レンズで集束された電子線の軌道模式図
(a)軸上軌道、(b)軸外軌道

軸外軌道を考えると、相似の関係から以下の式が成り立つ。

$$\frac{r_{vs}}{r_s} = \frac{a}{b} = \frac{1}{M} \quad (2-21)$$

一方、軸上軌道を考えると、 $\alpha_{vs} a = \alpha_s b$ から以下の式が成り立つ。

$$\frac{\alpha_{vs}}{\alpha_s} = \frac{b}{a} = M \quad (2-22)$$

式(2-21)と式(2-22)の両辺の積を整理して、以下が得られる。

$$r_{vs} \alpha_{vs} = r_s \alpha_s \quad (2-23)$$

物点と像点で電子のエネルギーが異なる場合は、電子のエネルギーを物点で eV_{vs} 、像点で eV_s の場合は、以下となる。

$$\sqrt{V_{vs}} r_{vs} \alpha_{vs} = \sqrt{V_s} r_s \alpha_s \quad (2-24)$$

この式を用いて物点を電子銃の仮想光源、像点を試料面として、仮想光源と試料で輝度を計算すると、輝度保存則が成立つことがわかる[25]。

$$\beta_v = \frac{I_p}{\pi^2 r_{vs}^2 \alpha_{vs}^2 V_{vs}} = \frac{I_p}{\pi^2 r_s^2 \alpha_s^2 V_s} \quad (2-25)$$

この式を変形して、試料上に投影された光源径に起因するスポット径は以下の式で表されることがわかる[19, 26]。

$$M_{\text{total}} \delta_o = M \times 2r_{vs} = 2r_s = \frac{2}{\pi \alpha_s} \sqrt{\frac{I_p}{\beta_v V_s}} \quad (2-26)$$

光源径に起因するスポット径は換算輝度、プローブ電流、収束角に依存する。ある一定以上のプローブ電流を試料に照射する必要がある場合に、電子源の換算輝度が十分に大きい場合は他の収差に比べて $2r_s$ が小さくなり、光源径を無視することができる。一方で、 $2r_s$ の値が他の収差と同程度となる場合はビーム径の計算で $2r_s$ を加味する必要がある。

SEM 観察でナノオーダの空間分解能を達成するのに必要な輝度値を見積もる。入射電子やSEの発生過程はポアソン統計に従うので、検出される電子数を N_{det} とした場合に、 $\sqrt{N_{\text{det}}}$ のゆらぎが生じる。1 ピクセルあたりで検出される平均的な電子数を N_{det} とした時に、SEM 像の SNR を大まかに見積もると $\sqrt{N_{\text{det}}}$ となる。1 ピクセルの滞在時間 (Dwell time) を $t_{\text{pix}} = 10 \mu\text{s}$ とし、 $\text{SNR} \sim \sqrt{N_{\text{det}}} = 10$ の SEM 像を得たい場合に必要な照射プローブ電流は $I = eN_{\text{det}}/t_{\text{pix}}$ から、約 1 pA となる。表 2 に記載した各電子銃について、照射プローブ電流 1 pA とし、照射エネルギー 1 keV と 10 keV の試料上に投影された光源径の開き角依存性を、式(2-26)に基づき計算した、結果を各々図 2-20. (a)(b)に示す。

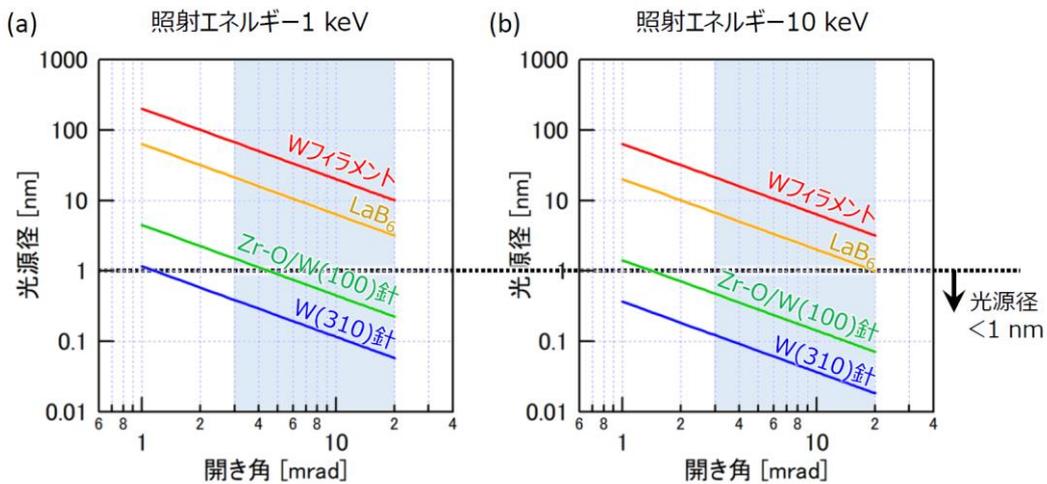


図 2-20. 試料上に投影された光源径の開き角依存性
照射エネルギー (a) 1 keV、(b) 10 keV

光源径は照射エネルギーの平方根に反比例 ($\propto V_s^{-1/2}$) するため、同じプローブ電流の照射条件で比べると、低照射エネルギーの条件ほど光源径に起因するスポット径が顕在化しやすい。図 2-11. (a)に示した照射エネルギー1 keV の時のビーム径の開き角依存性に基づき、高い空間分解能が得られる短 WD の照射条件を想定した場合の最適開き角が 10 mrad 付近にあることを考えると、照射エネルギー1 keV で光源径<約 1 nm を得るには、Schottky 電子源と同程度の換算輝度 $\sim 10^7$ A/m²/sr/V が必要となることがわかる。

2.8 結論

SEM のビーム径は、使用される SEM の照射条件に対応する球面収差係数、色収差係数、電子源のエネルギー幅と輝度、および照射エネルギーから見積もることができる。照射エネルギーの小さい SEM 観察条件で高い空間分解能を得るには色収差の低減が重要となる。色収差は色収差係数、電子源のエネルギー幅、および収束角に比例し、照射エネルギーに反比例する。このため、エネルギー幅の小さい電子源を用いることが好ましい。また、色収差係数は対物レンズの焦点距離と同程度の値となるため、対物レンズは短焦点距離のものを用いることが重要である。十分な照射プローブ電流を確保しつつ、投影光源径によってビーム径が制限されないようにするには、高輝度な電子源を用いることが重要である。

既存の商用 SEM の Schottky 電子源のエネルギー幅は 0.6 eV、換算輝度 $\sim 2 \times 10^7$ A/m²/sr/V であり、CFE 電子源のエネルギー幅は 0.3 eV、換算輝度 $\sim 3 \times 10^8$ A/m²/sr/V である。低加速 SEM の観察性能を向上するには、上記の電子源と同等以上の高輝度単色電子源が必要である。

第 2 章の参考文献

- [1] 田中信夫, 基本法則から読み解く物理最前線 走査透過電子顕微鏡の物理, 共立出版, 2018 年
- [2] 田中信夫, 高分解能透過電子顕微鏡の現在と今後, 日本結晶学会誌 Vol. 62, 175-179, 2020 年
- [3] L. Reimer, Scanning Electron Microscopy Physics of Image Formation and Microanalysis Springer Series in Optical Sciences 2nd Edition, 1998
- [4] D. E. Newbury, D. C. Joy, P. Echlin, C. E. Fiori, and J. Goldstein, Advanced Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis, Springer, 1986.
- [5] O. Scherzer, The theoretical resolution limit of the electron microscope, J. Appl. Phys. 20, 20 (1949)
- [6] H. Rose, Historical aspects of aberration correction, J. Electron Microsc. 58(3): 77–85 (2009)
- [7] S. Morishita, R. Ishikawa, Y. Kohno, H. Sawada, N. Shibata and Y. Ikuhara, Attainment of 40.5 pm spatial resolution using 300 kV scanning transmission electron microscope equipped with fifth-order aberration corrector, Microscopy, Vol. 67, Issue 1, 46–50 (2018)
- [8] <http://www.uhvem.osaka-u.ac.jp/jp/>
- [9] D. C. Bell and N. Erdman, Low Voltage Electron Microscopy Principles and Applications (Wiley) (2013).
- [10] N. Dumaresq, N. Brodusch and R. Gauvin, Low-voltage STEM-EELS Quantification for Beam Sensitive Material Characterization, Microsc. Microanal. 26 (Suppl 2), pp.1206-1208 (2020).
- [11] N. Brodusch and R. Gauvin, Characterization of Real Materials with Low Voltage STEM (30 kV): Current State and Challenges, Microsc. Microanal. 27 (Suppl 1), pp.1318-1320 (2021).
- [12] 揚村 寿英, 走査電子顕微鏡の検出系評価と噴水型二次電子検出器の開発, 筑波大学博士論文, 2018 年
- [13] 赤津昌弘, 小柏剛, 伊東祐博, 微細計測への挑戦 — 走査電子顕微鏡「SU9000」 —, 日立評論 Vol. 94, No. 2, 174-175, 2012 年
- [14] J. Usukura, A. Narita, T. Matsumoto, E. Usukura, T. Sunaoshi, Y. Tamba, Y. Nagakubo, J. Azuma, T. Mizuo, K. Nimura, M. Osumi, R. Tamochi, Y. Ose, Cryo-electron Microscope Developed for Simultaneous STEM, SEM Imaging and Its

- Application to Biological Samples, Scientific Instrument News, Vol. 10, 1-10 (2018)
- [15] 日本分析化学会 編, 半導体・電子材料分析, 丸善出版 (2013年).
- [16] 関口 隆史, カソードルミネッセンス(CL)法, まてりあ Vol. 35 第5号, 551-557, 1996年
- [17] H. Seiler, Secondary electron emission in the scanning electron microscope, J. Appl. Phys. 54, R1 (1983)
- [18] T. Aoyama, M. Nagoshi, H. Nagano, K. Sato and S. Tachibana, Selective Backscattered Electron Imaging of Material and Channeling Contrast in Microstructures of Scale on Low Carbon Steel Controlled by Accelerating Voltage and Take-off Angle, ISIJ International, Vol. 51, No. 9, pp. 1487-1491 (2011)
- [19] H. Q. Hoang, M. Osterberg, A. Khursheed, Experimental results from a second-order focusing toroidal energy spectrometer attachment for scanning electron microscopes, Nucl. Instrum. Meth. A, 645 241-244 (2011).
- [20] W. Han, M. Zheng, A. Banerjee, Y. Z. Luo, L. Shen, and A. Khursheed, Quantitative material analysis using secondary electron energy spectromicroscopy. Sci. Rep. 10, 22144 (2020).
- [21] K. Kumagai, T. Sekiguchi, Sharing of secondary electrons by in-lens and out-lens detector in low-voltage scanning electron microscope equipped with immersion lens, Ultramicrosc. 109, 368-372 (2009).
- [22] 薄膜磁気ヘッドスライダー用セラミックス材, セラミックス Vol. 42, No.1, 2007年
https://ceramic.or.jp/museum/contents/pdf/2007_1_04.pdf
- [23] K. Kanaya and S. Okayama ; Penetration and Energy-Loss Theory of Electrons in Solid Targets, J. Phys. D 5, 43 (1972)
- [24] 石川 順三, 荷電粒子ビーム工学, コロナ社 (2001年)
- [25] CASINO (<https://www.gel.usherbrooke.ca/casino/>)
- [26] M. Suzuki, T. Yamada and C. Y. Yang, Monte Carlo simulation of scanning electron microscopy bright contrast images of suspended carbon nanofibers, Appl. Phys. Lett. 90, 083111 (2007)
- [27] 裏 克己, ナノ電子光学, 共立出版, 2005年
- [28] 佐藤 貢, 走査電子顕微鏡 (SEM) の電子光学, 顕微鏡 Vol. 51. No. 1 pp.37-42 (2005).
- [29] 藤田 真, 小瀬 洋一, 電子レンズの設計技術 (前篇) (基礎理論から実装技術, 装置応用まで) On the Design of Electron Lenses 1, 顕微鏡 Vol. 51, No. 3, 171-176 (2016)
- [30] 大嶋卓, 電子顕微鏡用高輝度単色電子源の研究, 早稲田大学博士論文, 2013年

- [31] 日本表面科学会 編, 表面分析技術選書 透過型電子顕微鏡, 丸善株式会社 (1999年)
- [32] 下山 宏, 藤田 真, 電子銃・電子源 (前篇) —物理・光学の基礎—, 顕微鏡 Vol. 52, No. 3, pp160-165 (2017).

3. NEA フォトカソードを用いた電子源

3.1 緒言

既存の高輝度単色電子源として Schottky 電子源や CFE 電子源が SEM に搭載されている。これらの電子源と比べてより単色性に優れた電子源として、負の電子親和力 (Negative electron affinity : NEA) と呼ばれる表面状態を持つ半導体フォトカソードを用いた光励起方式の電子源に着目し、SEM への応用を試みた。このフォトカソードは、半導体の p 型の GaAs の表面に仕事関数を下げるためのセシウム (Cs) と酸素 (O_2) を吸着させたものであり、その励起光は GaAs のバンドギャップに対応する近赤外の波長帯を用いる[1]。

フォトカソード (photocathode) は光照射によって電子が放出される陰極であり、光照射に伴う金属または半導体からの光電効果を応用したものである[2]。低い真空準位や NEA 表面を持つフォトカソードは、光電子増倍管[2]、ストリークカメラ[3]、イメージングインテンシファイア[4]、暗視スコープ[5]などに応用され、工業的に利用されている。また、電子顕微鏡への応用例としては、ロッド状の LaB_6 単結晶に紫外波長のパルス光を照射する方式の電子源や[6, 7]、Schottky 電子源の陰極先端部に紫外波長のパルス光を照射する方式の電子源がある[8, 9]。技術課題の詳細は後述するが、これら方式のフォトカソードを用いて小さいエネルギー幅と高輝度を両立した電子源を得ることは難しい。

現行 SEM に搭載されている高輝度電子源の典型的な仮想光源径は、Schottky 電子源で数 10 nm、CFE 電子源において数 nm である[10]。一方、フォトカソードは励起光の照射領域から電子を放出させる。光学レンズを用いて集光した時の励起光の最小径は、回折限界で決まるため、波長と同程度のオーダーとなる。このため、フォトカソードを用いた光励起電子源では電子放出領域のサイズが他の電子源よりも大きくなる点を考慮する必要がある。本研究で使用した高輝度 NEA フォトカソードを用いた光励起電子源もこの装置構成を適用し、裏面集光方式でフォトカソードの活性層に励起光を直径約 1 μm 程度で集光して利用する構成とした。光励起電子銃の構成概要図を図 3-1 に示す。

本研究で使用したフォトカソードは GaP 基板上にエピタキシャル成長した p 型 GaAs から成る半導体フォトカソードである[11]。このフォトカソードは名古屋大学で高い偏極度のスピン偏極電子源として開発されたもので、GaAs/GaAsP の歪み超格子構造を持っている[12]。使用したフォトカソードの開発経緯や断面構造の詳細は文献を参照されたい[11]。

励起光の波長は使用するフォトカソードの種類に依存し、GaAs の場合は室温のバンドギャップエネルギー 1.42 eV に対応する吸収端の波長 873 nm よりも短波長の励起光が必要となる。本研究で用いたフォトカソードは超格子構造を持ち、そのバンドギャップエネルギーは 1.56 eV に対応する 794 nm よりも短波長の励起光必要である。また、本研究で用いたフォトカソードは裏面照射で利用するため、GaP 基板を透過する必要がある。GaP の吸収端

はバンドギャップエネルギー2.26 eVに対応して 549 nm 付近にあるため、超格子構造を持つ活性層で価電子帯から伝導帯に電子を励起させるには、励起光の波長として 550～790 nm を用いる。

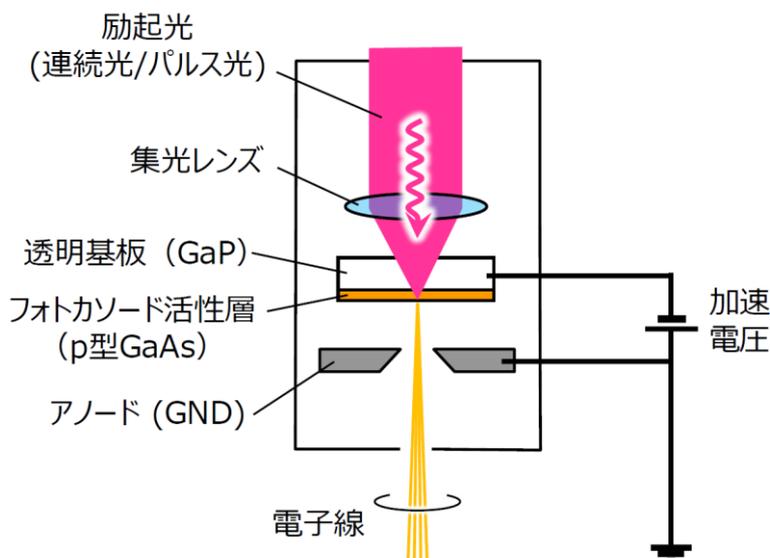


図 3-1. 高輝度 NEA フォトカソードを用いた光励起電子銃の構成

波長 λ の光を開口数 NA のレンズで集光した場合の理想的な集光径 ($1/e^2$ 幅) d_0 は以下の式(3-1)で計算できる[13]。

$$d_0 = 1.22 \lambda / NA \quad (3-1)$$

この式で、 $NA = n \sin\theta$ は集光レンズの開口数であり、 n は集光位置の屈折率、 θ は集光位置の光軸に対する光線の最大角度を表す。本研究で用いたフォトカソードに対する集光レンズは開口数 0.5 であり、励起波長を 785 nm に設定した場合の集光スポット径 ($1/e^2$ 幅) は $d_0 = 1.8 \mu\text{m}$ となる。この集光スポット径の計算値からわかる通り、フォトカソードを用いた電子源の光源径は既存の Schottky 電子源 (ϕ 数 10 nm) や CFE 電子源 (ϕ 数 nm) と比べて桁違いに大きい。一方で、p 型 GaAs を用いた NEA フォトカソードの電子放出角度は他の電子源と比べて狭い特長を持つ (詳細は後述)。このため、名古屋大学で開発された NEA フォトカソードは高い輝度を持ち、最大で Schottky 電子源と同程度の輝度が報告されている[14]。

以上をまとめると、使用した NEA フォトカソードは、①Schottky 電子銃並みの高輝度特性を持ち[14]、②CFE 電子源よりも狭いエネルギー幅を持つ[15]。さらに、③パルス化された励起光を照射することでパルス幅 1 ns 以下の短パルス電子線を容易に生成でき[16]、④励起光として円偏光を照射することで最大で 90 %もの高スピン偏極度の電子線を得るこ

とができる[14]。この電子源を SEM に搭載し、パルス電子銃として利用することでパルス SEM 像、スピン偏極電子銃として利用することでスピン SEM 像が得られ、従来の SEM では対応できない新しい計測に応用できるものと期待される。

3.2 電子放出原理

3.2.1 NEA 表面

電子親和力 (χ) は真空準位 (Vacuum level : V.L.) から表面に電子を 1 個与えた時に放出されるエネルギーとして定義され、陰イオンになりやすいものほど電子親和力が大きい。半導体の電子親和力は伝導帯下端のエネルギー準位 (E_C) から真空準位 (V.L.) までのエネルギー差 ($\chi = V.L. - E_C$) として定義される。

通常の p 型 GaAs の場合は伝導帯下端のエネルギー準位よりも真空準位が高く ($V.L. > E_C$)、電子親和力が正 ($\chi > 0$) の状態 (PEA) となっている。このため、光照射によって半導体内で価電子帯から伝導帯に電子が励起されても電子は真空領域に放出されない(図 3-2. (a))。p 型 GaAs 表面に Cs と O₂ を吸着させて真空準位を低下させると、伝導帯下端のエネルギー準位よりも真空準位が低くなり ($V.L. < E_C$)、電子親和力が負 ($\chi < 0$) の状態 (NEA) となる。このプロセスを施すことで、フォトカソード活性層に励起光を照射して励起された電子が真空領域に放出されるようになる(図 3-2. (b)) [17]。

GaAs を用いて NEA 表面を得るために、活性層は p 型不純物をドーピングし、表面領域にバンドベンディングを生じさせる。本研究で使用したフォトカソードは p 型ドーパントとして亜鉛 (Zn) を用い、最表面のドーパント濃度を $6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ と高濃度にするすることで、バンドベンディングした空乏層の領域を短くしている。これにより、励起後に表面拡散した電子の一部が正孔と再結合する時間が短縮されることで、高い電流密度の電子放出が可能となる [18]。フォトカソード最表面の p 型 GaAs に Cs と O₂ を吸着させることで NEA 表面が得られる。Cs 原子は構造上、最外殻に配置する電子を別の原子や分子に供与して陽イオンになりやすい性質を持つ。このため、固体表面に Cs 単原子層が形成されると、下地と Cs 層の間に電気双極子が形成されて V_{dipole} だけ真空準位が低下する [19-21]。GaAs 表面に吸着した Cs と O の構造は現段階でも未解明な部分が多いが [21]、バンドベンディングと $\text{Ga}^- - \text{Cs}^+$ の電気双極子の加算的効果によって図 3-2. (b) に示すポテンシャル状態が実現される [22]。CsO 層は厚み 1 nm 程度の、アモルファス層と考えられている [23]。

NEA 表面の寿命や劣化要因に関しても研究がなされており、酸素 (O₂) や酸化物 (H₂O、CO) が表面吸着すると量子効率が低下する [24]。量子効率が低減する要因の 1 つは経時的な GaAs の酸化であると考えられている。CsO の代わりに Cs₂Te 層を形成することで GaAs の酸化を抑制しフォトカソードを長寿命化した報告がある [25]。

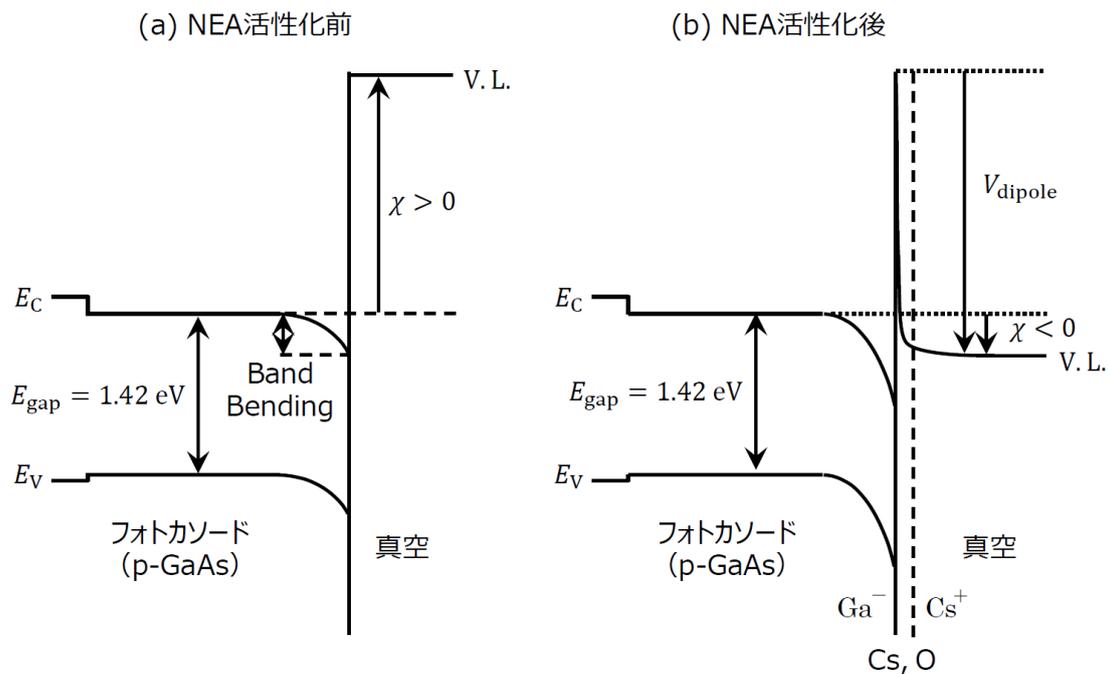


図 3-2. フォトカソード活性層と真空の界面のエネルギーバンドダイヤグラムの模式図
 (a)NEA 活性化前、(b)NEA 活性化後 [22]

3.2.2 単色性

熱電子源や Schottky 電子源とは異なり、フォトカソードを用いた電子源では電子を放出させるために電子源を通電加熱する必要がない。このため、単色性の良い電子源が得られる。GaAs のエネルギーバンド構造を図 3-3 に示す。GaAs は直接遷移型の半導体であり、 Γ 点のバンドギャップエネルギーは 1.42 eV である[26]。

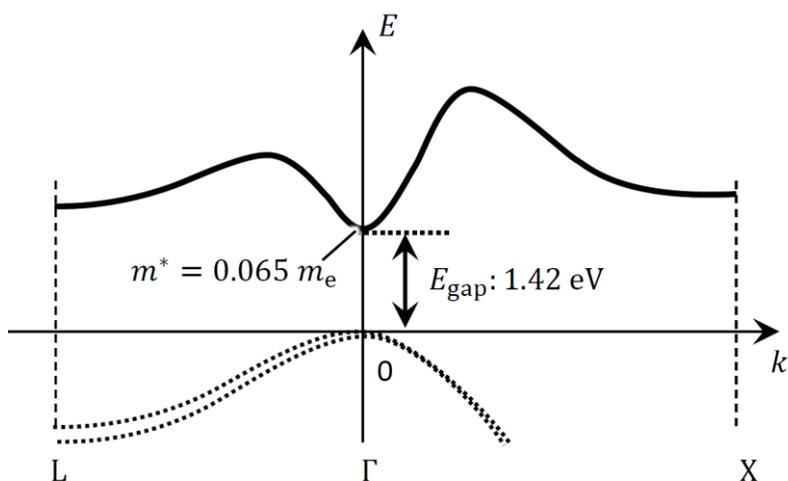


図 3-3. GaAs の Γ 点付近のバンド構造 [25]

NEA 活性化した GaAs フォトカソードの活性層に励起光を照射し、NEA 表面から電子が放出される際のエネルギーバンドダイアグラムの模式図を図 3-4 に示す。

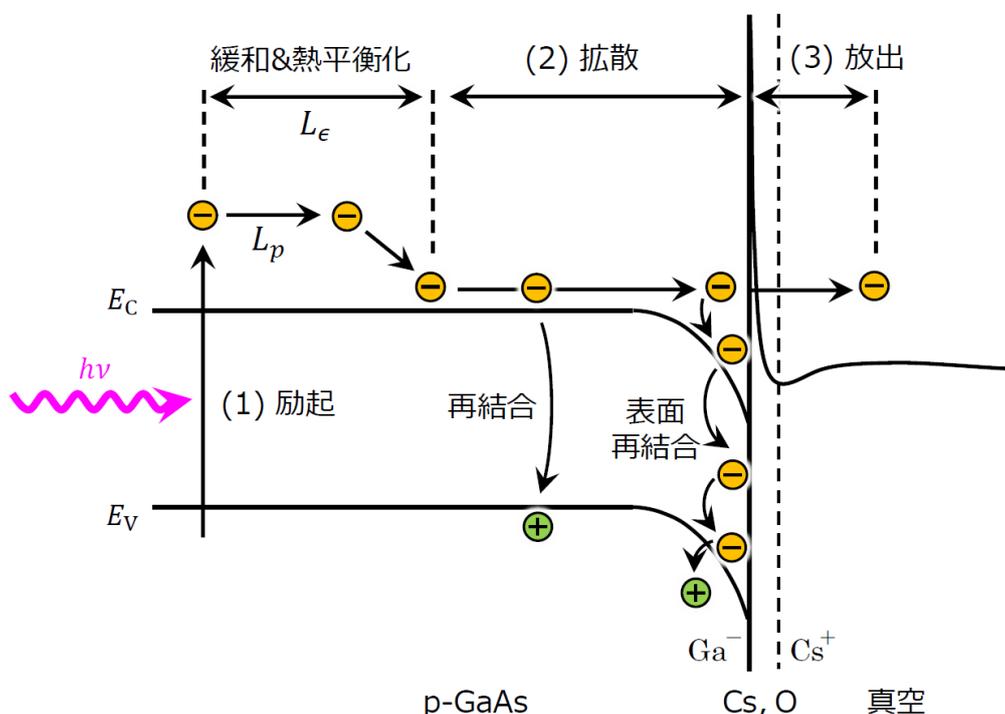


図 3-4. エネルギーバンド図に基づく NEA フォトカソード表面の電子放出機構

励起光の照射に伴い NEA フォトカソードの表面から電子が放出される過程は、(1) 電子が価電子帯から伝導帯に励起される過程、(2) 表面に拡散される過程、(3) 表面障壁を通過して真空中に放出される過程の 3 つのステップで構成される [23]。価電子帯から伝導帯に励起された電子は表面に拡散するまでの間に、他の励起電子、正孔、フォノンにより散乱される。伝導帯に励起された電子が散乱過程でエネルギーを失い、伝導帯下端のエネルギーになるまでの過程は熱平衡化過程 (thermalization process) と呼ばれる。励起後に電子が伝導帯下端のエネルギーになるまでの緩和時間は約 0.1 ps、平均移動距離 L_p は 100 nm 程度となる。熱平衡化過程の平均移動距離 L_e は 300 nm 程度である。熱平衡化した電子とホールの再結合時間はナノ秒程度と長く、拡散距離は 5 μm 程度となる。この拡散距離が L_p や L_e と比べて長いため、p 型 GaAs の NEA フォトカソードから放出される電子は主に熱平衡化した電子と考えられている。

NEA 表面に形成される CsO 層は膜厚 1 nm 程度のアモルファス層であり、脱出過程において電子に対する表面障壁となる。フォトカソードの表面に拡散した電子の一部は、表面障壁をトンネリングして真空領域に脱出する。バンドベンディング領域で反射・散乱されなが

らエネルギーを失った電子は表面で再結合するため、真空領域に放出されない[27]。

なお、p型 GaAs を用いた NEA フォトカソードをパルス光で励起した場合に放出されるパルス電子線の最短パルス幅は、伝導帯に励起された電子の平均的な拡散時間で決まり、最短パルス幅は数 ps となる[17]。（詳細は第 5 章にて後述する。）

図 3-4 に示すように、NEA 表面の CsO 層と真空の境界部にはポテンシャルの窪みが形成される。これは真空領域に放出された電子がフォトカソード表面に鏡像電荷を生じ、ポテンシャルを緩和することを反映したものである[28]。また、図 3-4 では、フォトカソード表面から電子を引出すための電界が分布している状況を反映させ、真空領域の真空準位は傾斜して表記している。

NEA 表面を利用しない、金属カソードや LaB₆ などを用いたフォトカソードの場合、放出される電子量を多くするには、仕事関数 ϕ_B と比べて光子エネルギーの大きい（短波長の）励起光を照射する必要がある。励起波長 λ は $hc/\lambda > \phi_B$ とする必要があり、フォトカソードから放出される電子のエネルギー幅は大きくなる[10]。これに対し、NEA 表面の半導体フォトカソードでは、バンドギャップエネルギーと同程度のエネルギーの波長で励起された電子が、フォトカソード内で熱平衡化過程を経て効率よく真空中に放出されるため、放出される電子のエネルギー幅は $\Delta E \sim |\chi|$ となる[17]。NEA フォトカソードを用いた電子源から放出された電子のエネルギー幅が小さい特長は、以上に示す特性に起因するものである。実際のところ、EELS を用いて本研究で用いたものと同じ高輝度単色 NEA フォトカソードから放出された電子線のエネルギー幅を測定した結果は 0.24 eV 程度となっている[15]。

3.2.3 最大放射角

フォトカソードとして半導体 p 型 GaAs を用いた場合の特長として、電子放出角が小さい点が挙げられる。これは、前述のエネルギー幅に起因する小さな運動量の広がり、固体中の電子の有効質量が真空中の電子の静止質量と比べて小さいためである。有効質量の違いは、フォトカソード内から真空中に電子が放出される際に、屈折作用を受けることが主な要因である。結晶中の周期ポテンシャル内を運動する電子やホールは、以下の式で定義される有効質量 m^* の自由粒子として近似される [29]。

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k^2} \quad (3-2)$$

図 3-4 に示した GaAs のエネルギーバンド構造に基づき計算される、 Γ 点付近で伝導帯に励起された電子の有効質量の文献値は、電子の静止質量 m_e を用いて $m^* = 0.065 m_e$ と表される[26]。半導体結晶中の有効質量は真空中よりも小さく、フォトカソードの活性層から真空領域に放出される際に横方向の運動量が保存されることから電子波の進行方向が変化する。この運動量ベクトルの変化の模式図を図 3-5 に示す。

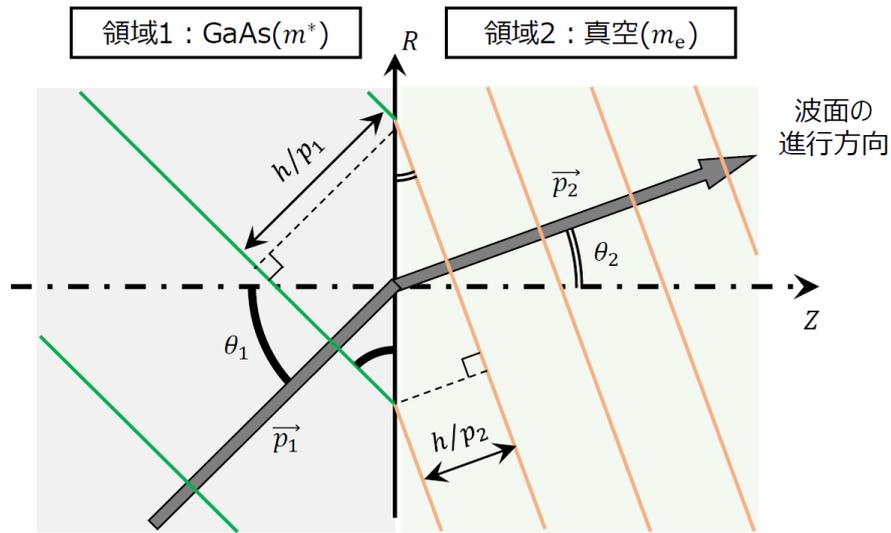


図 3-5. 電子質量の違いに起因する
電子波の運動量ベクトルの変化の概略図

簡略化したモデルに基づき、室温の p 型 GaAs のフォトカソードから放出される電子の放出角度を見積もる[30]。フォトカソード面と平行な方向（横方向）の運動量はフォトカソード表面からの電子放出前後で保存する。この横方向の運動量 p_{\parallel} は半導体内外で一致するため、以下が成立つ。

$$p_{\parallel} = p_1 \sin \theta_1 = p_2 \sin \theta_2 \quad (3-3)$$

また、有効質量を m^* 、電子の静止質量を m_e として、以下のエネルギー保存則が成立つ。

$$\frac{p_1^2}{2m^*} = \frac{p_2^2}{2m_e} \quad (3-4)$$

p_1 と p_2 を消去することで、以下の関係式が得られる。

$$\theta_2 = \arcsin \left[\sqrt{\frac{m^*}{m_e}} \sin \theta_1 \right] \quad (3-5)$$

これより、フォトカソード表面の電子放出角 θ_2 は $\arcsin \sqrt{m^*/m_e}$ となるカットオフ角度を持つ。

フォトカソード内の横方向の運動エネルギーを $\sim k_B T$ 、真空領域でのフォトカソード面と垂直な方向（縦方向）の運動エネルギーの最大値は NEA 表面の電子親和力 $\chi (< 0)$ の絶対値 $|\chi|$ と同程度とし、横方向の運動量が表面における緩和過程によって広がらないとする。真空領域の横方向の運動量の広がり $\sqrt{\langle p_x^2 \rangle}$ と縦方向の運動量の広がり $\langle p_z \rangle$ は以下となる。

$$\sqrt{\langle p_x^2 \rangle} = \sqrt{m^* k_B T} \quad (3-6)$$

$$\langle p_z \rangle = \frac{1}{2} \sqrt{m^* |\chi|} \quad (3-7)$$

ここで、 z 方向について、 $z > 0$ と $z < 0$ で対称な分布を仮定した。フォトカソード内の電子進行角度 θ_1 は以下となる。

$$\tan\theta_1 = \frac{\sqrt{\langle p_x^2 \rangle}/2}{\langle p_z \rangle} = \sqrt{k_B T / |\chi|} \quad (3-8)$$

$$\sin\theta_1 = \frac{\tan\theta_1}{\sqrt{1 + \tan^2\theta_1}} = \sqrt{\frac{k_B T}{k_B T + |\chi|}} \quad (3-9)$$

以上より、フォトカソードから放出される電子放出角の最大角度 θ_2 は以下のように見積もられる[21]。

$$\theta_2 = \arcsin \left[\sqrt{\frac{k_B T}{k_B T + |\chi|}} \cdot \sqrt{\frac{m^*}{m_e}} \right] \quad (3-10)$$

この式で、 k_B はボルツマン定数、 T は絶対温度である。例えば、 p 型 GaAs のフォトカソードでは、 Γ 点の電子の有効質量は $m^* = 0.065 m_e$ であり、室温 ($T=300$ K)、電子親和力 $|\chi| = 0.2$ eV を想定した場合、 $\theta \sim 87$ mrad (5°)となる。以上より、フォトカソードとして半導体 GaAs を用いた場合に放出される電子の指向性が高く、エミッタンスの小さい電子線が得られる。

3.2.4 高輝度特性

電子源の輝度は式(2-19)で定義され、単位面積、単位立体角あたりの放出電流として計算される。NEA フォトカソードを用いた光励起電子源を高輝度電子銃として利用するには、励起光をフォトカソードの活性層上で回折限界に近い条件で集光することが重要である。この点に関して、透明基板上に形成された、フォトカソードの裏面近傍に高 NA の光学レンズを配置することで、励起光の集光径 $\phi 1 \mu\text{m}$ 程度にできる構成が 2000 年頃に考案された[31, 32]。本研究の電子銃もこの構成を踏襲した。励起光源からフォトカソードまでの励起光学系の構成概略図を図 3-6. (a)に示す。

フォトカソードに対する励起光の集光状態をモニタするために、反射光をビームスプリッタで軸外に反射させ、CMOS カメラで観察できる構成としている。次章の連続電子線を用いた低加速 SEM の分解能評価に使用した波長 785 nm の CW 光源について、フォトカソードの活性層に集光した時の反射光の CMOS 像を図 3-6. (b)に、そのラインプロファイルを図 3-6. (c)に示す。FWHM で評価した集光スポット径は約 $1 \mu\text{m}$ が得られた。最小集光径のガウシアン分布の $1/e^2$ 幅は式(3-1)を用いると $1.8 \mu\text{m}$ となるため、概ね理想的な集光条件が得られていることを確認した。

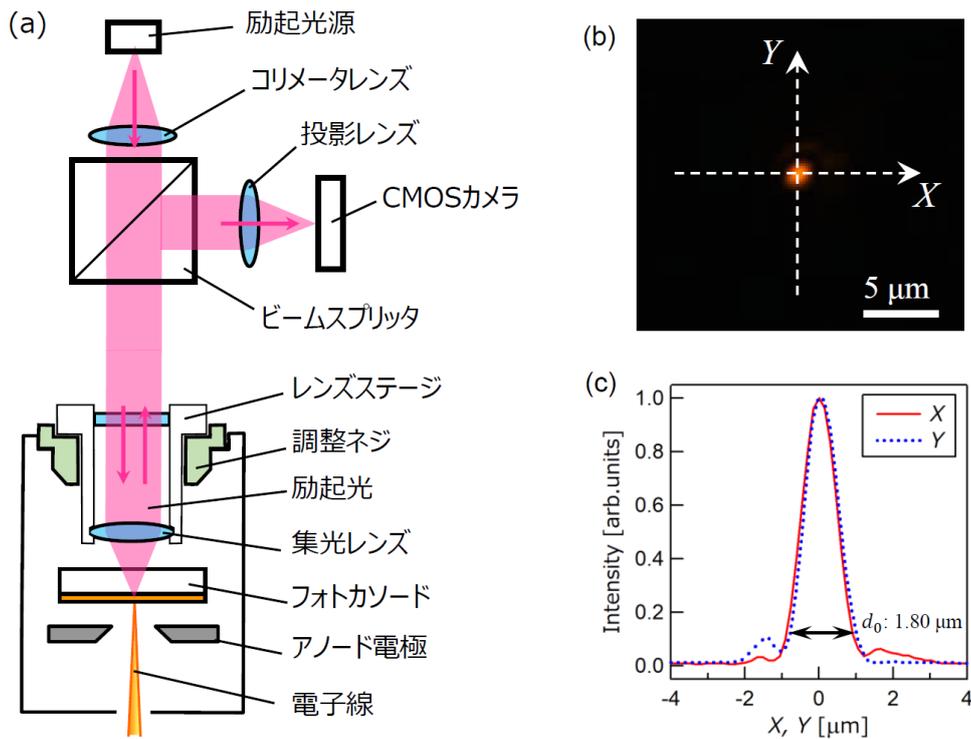


図 3-6. (a) 励起光学系の構成概要図、(b) 活性層に集光した時の反射光の CMOS 像、
(c) 集光スポットのラインプロファイル

3.3 空間電荷効果と表面電荷効果

陰極から放出できる電流には制限がある。NEA フォトカソードで放出電流の制限となる空間電荷効果と表面電荷効果について、以下で説明する。

3.3.1 空間電荷効果

カソードから放出される電子線の電流が増大すると、電極間に分布する加速電界が電子の周囲に形成された逆方向の電界によって相殺され、カソード表面の加速電界が低下する。空間電荷制限条件は、アノードからカソードの方向に伸びる全ての電気力線が放出された電子との間で終端し、カソード表面の加速電界が 0 となった条件に対応する。この条件になると電子はカソードから真空領域に放出されなくなる。この現象は電流密度に依存するため、励起光を活性層に集光して利用する場合は、この効果によるエミッション電流の制限に注意する必要がある。本研究で使用した NEA フォトカソードで励起光を活性層に集光した時の空間電荷制限電流については、第 5 章で詳細を述べる。

また、フォトカソードから真空領域に放出された電子線について、電流密度が大きいエミッション条件では電子間にクーロン相互作用がはたらき、電子線のエネルギー幅の増大や、

照射スポット径の増大など、Boersch 効果と呼ばれる悪影響を受ける。特に短パルス幅にパルス化された電子線については、進行方向に Boersch 効果を受けると電子線のエネルギー幅やパルス幅が増大し、進行方向と垂直な方向に Boersch 効果を受けると電子線の輝度が低下する。これにより、パルス電子線の照射性能が劣化することを考慮する必要がある[16]。

3.3.2 表面電荷効果

NEA 表面を有する半導体フォトカソードを用いた電子源に特有な制約として、表面電荷効果による電流制限がある。空間的に分布する電子によって真空領域に電子が放出されにくくなる現象としては前節で説明した空間電荷効果と原理が似ているが、現象が生じる領域がフォトカソード内部の最表面であるため、表面電荷効果 (Surface charge effect) と呼ばれ、空間電荷効果 (Space charge effect) とは区別される。

表面電荷効果が生じる前後のフォトカソード活性層と真空の界面のエネルギーバンドダイヤグラムの模式図を図 3-7. (a)(b)に示す。

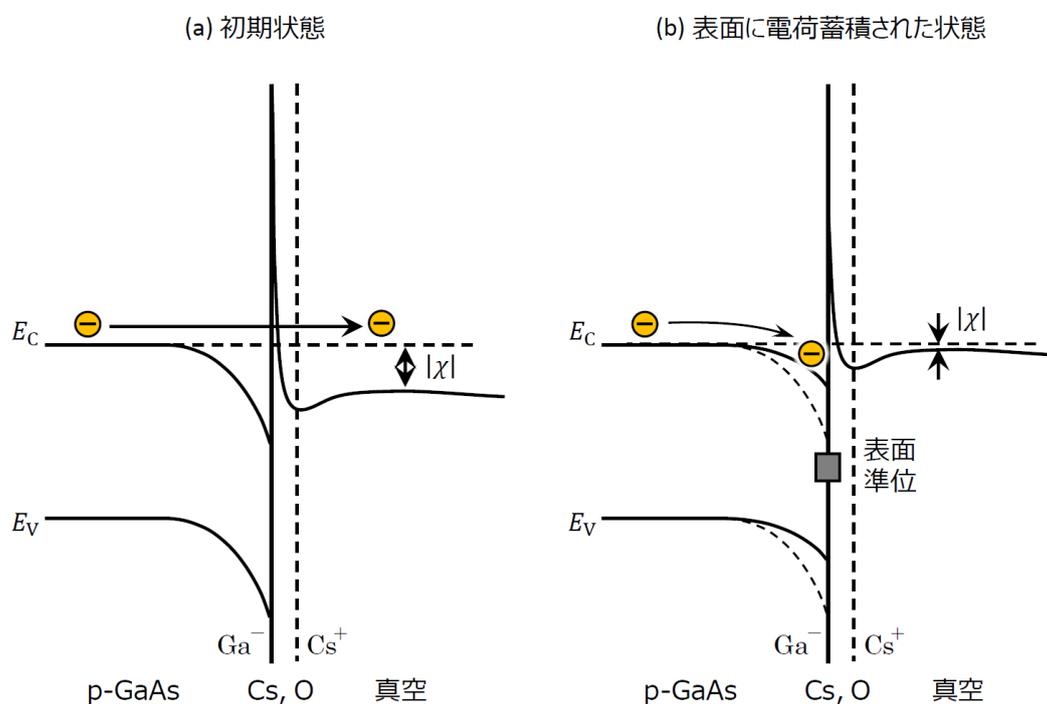


図 3-7. フォトカソード活性層と真空の界面のエネルギーバンドダイヤグラムの模式図
(a) 初期状態、(b) 表面に電荷蓄積された状態

NEA フォトカソードに光照射して励起された電子の一部は、フォトカソード最表面の空乏層でエネルギーを失い、伝導帯の底や表面準位にトラップされる。このようにしてフォト

カソード表面に電子が蓄積されると、空間電荷となってフォトカソード表面の電子ポテンシャルが上昇する。フォトカソード表面の電荷蓄積に伴い、真空準位が上昇して実効的に負極性の電子親和力 $|\chi|$ が小さくなり、放出電流量が減少する。表面に蓄積された電荷はいずれ価電子帯の正孔と再結合するが、電荷が蓄積されている間は放出電流量が少なくなる[10]。

この効果は、フォトカソードに強いパルス光を照射して放出される電子線のパルス波形を計測することで観測される。単一の電子線パルスで、各パルスの先頭で大きい電流が放出される一方、時間の経過とともに電荷蓄積が生じて放出される電流が低下する[33]。また連続で2つの強いパルス光を照射して放出される電子線パルスで、1つ目よりも2つ目の電流量が低下する[18]。

3.4 NEA フォトカソードを用いた電子源の特長

Schottky 電子源や CFE 電子源などの針状電子源に対し、本研究の NEA フォトカソードを用いた電子源は面状電子源であり、従来電子源とは構成が異なる。また、このフォトカソードから放出される電子線は低エミッタンスであるため良好な干渉性を備える。これらの NEA フォトカソードを用いた電子源の特長について、以下に述べる。

3.4.1 面電子源

面状電子源は、フォトカソードより放出された電子が対向するアノード電極を効率よく通過させることができる特長を持つ。面状電子源の特長を活かした応用として、マルチビーム電子源が考えられる[34]。従来のマルチビーム電子源は、単一電子源から放出された電子線を、マルチレンズアレイなどを用いて複数の電子線に分岐する[35]。このため、元の電子源輝度を β として n 本のマルチビーム電子源として利用した場合、1つ1つの電子線の輝度は高々 β/n となる。これに対し、フォトカソードを用いた電子源では励起光源を複数設けることで容易にマルチビーム電子源として利用できる。例として、本研究のフォトカソードを電子源2つのマルチビーム電子源として利用した場合の構成を図3-8に示す。なお、図3-8では2本のマルチビームの場合の例を示しているが、同様にして光源を n 個設けることで、 n 本のマルチビーム電子源を実現できる。

必要な電子源の数だけ励起光源を設け、各励起光がフォトカソードの活性層に集光されるように励起光学系を構成する。1つ1つの電子線は独立した電子源となるため、各電子源を輝度 β で利用できる点が利点となる。高輝度な面状電子源を用いることで、高輝度特性を n 倍化して利用できる点は、1つの電子源を分岐して利用する方式と比べて優位である。マルチビーム電子源は、例えば電子線リソグラフィーのように、パターン描画が必要な装置において、転写パターンに対応する電子線を一括照射することでスループットを向上できる。ま

た別の応用例として、マルチビーム電子源の各照射電子線の照射位置に対応させて信号電子を独立に検出できる検出器を配置することで、従来のシングルビームの SEM と比べて計測スループットを大幅に向上できると期待されている。

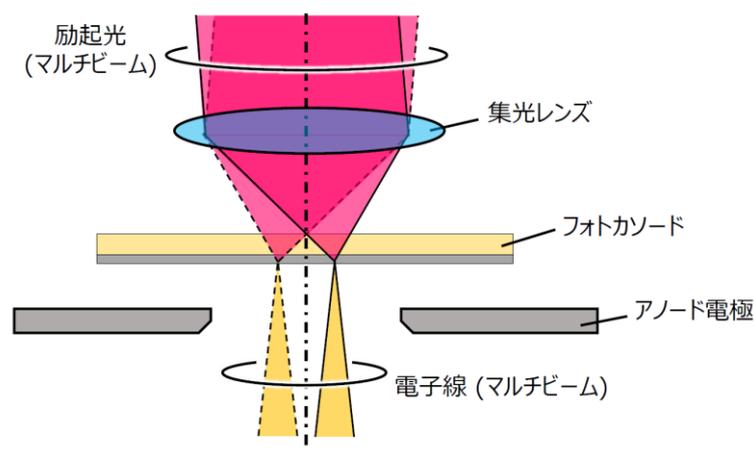


図 3-8. フォトカソードをマルチビーム電子源として利用した場合の構成例

フォトカソードを用いた電子源では、照射する励起光を制御することで、電子放出面の空間構造や時間構造を変更できる特長を持つ。一例として、ホローコーン照明や輪帯照明などは通常の針状電子源を用いた場合は複雑な制御が必要となる。面状電子源では、電子放出の位置やタイミングを制御することで、ホローコーン照明や輪帯照明の制御が容易となる。また、従来の電子光学系では試料上の電子照射位置や電子照射角度を変えるには偏向器を利用する必要があった。一方の面状電子源では、電子放出位置を変えることで、電子光学系の条件を固定したまま電子照射位置や電子照射角度を変えることができる。

また、フォトカソードに照射する励起光の強度やデフォーカス量によって放出電流や仮想光源径を制御できる点も、他の電子源にはない特長である。通常電子顕微鏡では、電子銃の引出し電圧を変える、またはコンデンサレンズのクロスオーバー位置を変えて直下に搭載される絞りを通過する電子線の照射電流量を変える必要があり、照射電流を変えるごとに電子光学系の照射条件を変更する必要がある。これに対し本研究のフォトカソードを用いた電子源では、電子光学系の照射条件を固定して、励起光の照射条件のみを変更することが可能である。

3.4.2 干渉性

波の位相が揃う度合いをコヒーレンス（干渉性）と呼ぶ。電子線ホログラフィー計測を行う際にはエネルギーや波面が揃ったコヒーレントな（干渉性が良い）電子線が必要となる。光軸と $\pm\alpha_0$ の角度をなして進行する波長 λ の電子線に対する干渉長（波面を定義できる領

域の幅) は幾何学的に $\lambda/2\alpha_0$ と計算できる[36]。このため、低エミッタンスの電子源では高コヒーレントな電子線を得やすい。本研究で用いた高輝度単色 NEA フォトカソードから放出される電子線については、バイプリズムを用いて観察される干渉縞の直径から、試料位置で 170 nm の干渉長が得られている[14]。

理想的にコヒーレントな場合 (平行度 1、放出角度広がり 0)、図 3-9. (a)に示すように、空間的に広がっている電子線をレンズで点集束することが可能となる (エミッタンス 0)。フォトカソードを用いた電子源は Schottky 電子源や CFE 電子源と比べて光源径が大きいことを 2 章で述べたが、高コヒーレントな電子源とレンズを組合せて、電子線を点集束できる可能性について検討した。

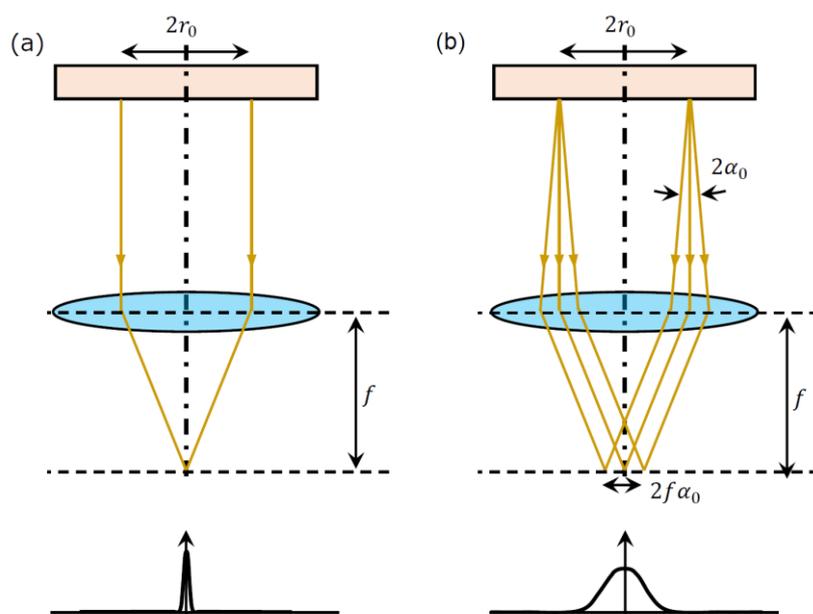


図 3-9. 角度広がりがない電子源 (左) と角度広がりがある電子源 (右) でレンズの後焦点に集束した場合の軌道模式図と集束位置の信号強度 [35]

フォトカソードから放出される電子線が角度広がりを持たない場合、電子線の軌道は図 3-9. (a)のようになり、電子線を 1 点に集束できる。一方、実際の電子源は有限の放出角度を持ち、放出角度の異なる電子線は異なる点に集束される。このため、電子線が角度広がりを持つ場合は集束点が 1 点とならず、図 3-9. (b)に示すように角度分布に依存する空間的な強度分布を持つことになる。レンズの焦点距離を f 、射出位置での電子の広がり ($2r_0$) と角度の広がり ($2\alpha_0$) を図 3-9. (b)に示すように定義してエミッタンス保存則を適用すると、以下の関係式が得られる。

$$r_0 \times \alpha_0 \times \sqrt{\Phi_0} = r_1 \times \frac{r_0}{f} \times \sqrt{\Phi_1} \quad (3-11)$$

この式から、集束点の横方向の広がり $2r_1 = 2f\alpha_0\sqrt{\Phi_0/\Phi_1}$ と求められる。このため、定性的には、電子源からの初期放出角 α_0 が十分に小さい条件で、レンズ焦点距離 f を短くなるように電磁場を分布させ、アノード通過後の電子のエネルギー Φ_1 が充分に大きくなるように設定できれば r_1 を小さくできる。集束点の横方向の広がり r_0 に依存しない。

以上について図 3-10 の電極構造で検証した。カソード電圧 $|V_0|$ に対し引出し電圧 $V_1 = 3|V_0|$ に設定し、アノード直下にクロスオーバを設けた。

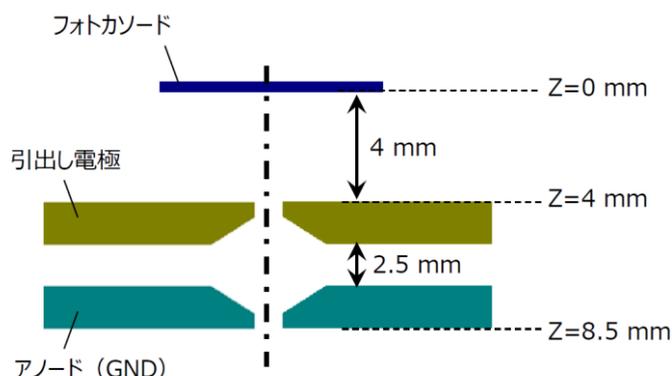


図 3-10. 検討したレンズ電極構造

フォトカソードから放出される際の初期エネルギーは $\Phi_0 \sim 0.1 \text{ eV}$ とする。レンズ焦点距離は上記の印加電圧に設定した場合に集束点が $Z = 10 \text{ mm}$ 付近に形成されるため、 $f = 10 \text{ mm}$ とする。 $2r_1 = 2f\alpha_0\sqrt{\Phi_0/\Phi_1}$ の Φ_1 依存性を初期放出角度 $\alpha_0 = 5 \sim 20^\circ$ について計算した結果を図 3-11 に示す。なお、この計算で相対論補正は考慮していない。

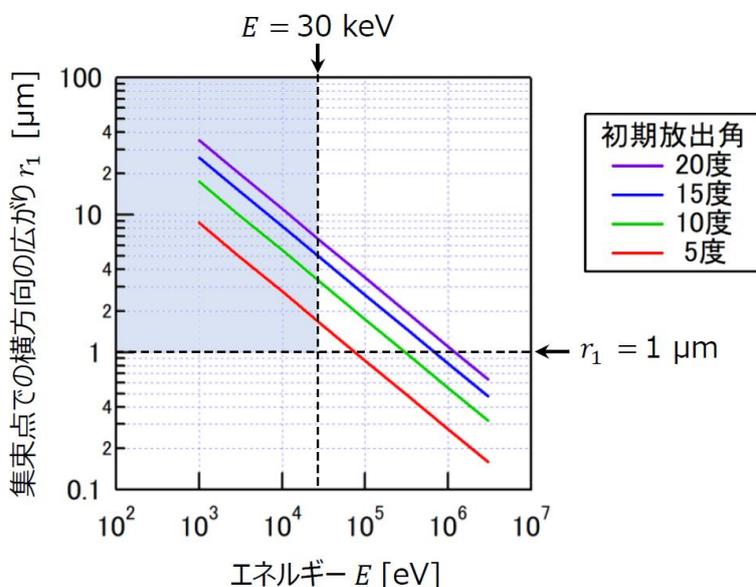


図 3-11. 電子線集束点での横方向の広がりエネルギー依存性

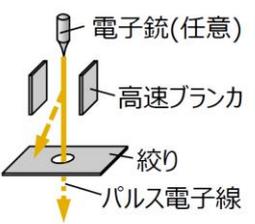
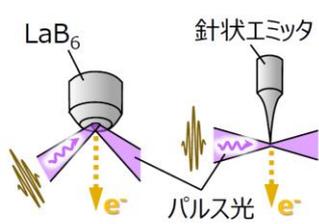
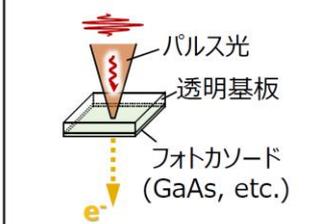
この計算結果から、電子の広がり角度を考慮した場合、集束点の広がり r_1 を小さくするには電子線の照射エネルギーを大きくする必要があることがわかる。ただし、NEA フォトカソードを用いた電子源の電子線の初期放出角度として $\alpha_0 = 5^\circ$ とした場合も、SEM で利用される照射エネルギー $\leq 30 \text{ keV}$ では $r_1 \ll 1 \mu\text{m}$ にはできない。このため、本研究のNEA フォトカソードをポイントソース化して高輝度電子源として利用するには、励起光をフォトカソードの活性層で $\sim \phi 1 \mu\text{m}$ 程度に集光して利用する方式が最も合理的である。

なお、実験的に干渉性を評価する手法としては、バイプリズムを用いてホログラムを観察する方法や、ナイフエッジを入れてフレネル縞を観察する方法などがある。

3.5 パルス電子銃

電子顕微鏡における照射電子線をパルス化する手法を表 3-1 にまとめる。電子線をパルス化するための方式は、高速ブランカを用いる方法と、励起光を照射して発生する電子線を利用するものに大別される[37]。高速ブランカを用いた方式は、電子線の経路上に電子線を偏向制御するためのブランキングユニットと、絞りを設置し、ブランキングユニットによる高速偏向により絞りを通過する電子線をチョッピングすることで電子線をパルス化する。この方式は、電子源の改造が不要であり、既存の高輝度電子源を利用できる。ただし、短パルス幅の電子線を得るには、偏向感度を大きくするために、ブランキングの偏向中心と絞りの距離を長くする必要がある[38]。また、ブランキングの偏向中心に電子線のクロスオーバを設ける必要があり、最終像面のボケ量はクロスオーバ位置に依存するため、短パルス幅と高い空間分解能を両立することが難しい[39]。この方式で得られる電子線の最短パルス幅は数 10 ～数 100 ps である[36]。得られるパルス幅は電子線の照射エネルギーに依存し、低照射エネルギーの電子線ほど短パルス幅を得やすい[40]。

表 3-1. パルス電子銃の方式比較

手法	高速ブランカ & 既存電子源	光電効果利用 (励起光: UV光)	p型GaAs & NEA表面 (励起光: 近赤外光)
構成	 <p>電子銃(任意) 高速ブランカ 絞り パルス電子線</p>	 <p>LaB₆ 針状エミッタ パルス光 e⁻</p>	 <p>パルス光 透明基板 フォトカソード (GaAs, etc.) e⁻</p>
メリット	電子銃の改造不要	短パルス幅 (<1 ps)	高輝度 エネルギー幅が小さい (<0.2 eV) 短パルス幅 (> ~ps)
デメリット	パルス幅が加速に依存 (パルス幅 > 100 ps) ブランキングノイズの混入 ブランカ中心にクロス必須	低輝度 エネルギー幅が大きい (> 数 eV) 電子銃の改造が必要	電子銃の改造が必要

励起光を照射して電子線をパルス化する方式は、励起光として短パルス光を照射することで、短パルス電子線を得ることができる。この方式のパルス電子銃は、本章の冒頭でも触れた通り、励起光の集光スポットが電子発生源となる点に注意が必要である。針状エミッタ先端部にパルス光を照射する方式は、この点を鑑みて検討されたもので、電子放出領域が小さいため、光源径を小さくできる[8, 9]。平面フォトカソードとしては前面または裏面からパルス光を照射するものがある[6, 7, 11, 12]。前面から励起光を照射する場合、励起光の集光レンズをフォトカソードの近傍に配置することが難しい。これに対し、透明基板上に形成されたフォトカソードに対し、背面から励起光を照射する構成の場合は、背面近傍に集光レンズを配置することで回折限界まで励起光を集光できる。本研究の高輝度単色 NEA フォトカソードは背面照射型の平面フォトカソードの構成に該当する。

3.6 開発した電子銃の構成

本研究で作製した、高輝度単色 NEA フォトカソードを電子源とする電子銃の構成概要図を図 3-12 に示す。新規に開発した電子銃はフォトカソード表面に NEA 状態を形成するための活性化室と、フォトカソードを電子源として利用するための電子銃室の 2 室構造とした。活性化室で NEA 活性化プロセス実施し、表面処理完了後に電子銃室に搬送して高輝度 NEA フォトカソードを電子源として利用する。このため、カソードパックに固定したフォトカソードを、トランスファーロッドを用いて搬送する構成とした。

活性化室には、フォトカソード表面をクリーニングするためのヒータ、クラッキングセル、NEA 活性化するためのセシウム源 (Cs) や酸素源 (O_2) が備え付けられている。カソードパックに固定されたフォトカソードは、活性化室内で NEA 表面を形成した後にトランスファーロッドを用いて電子銃室に搬送され、フォトカソード裏面側から励起光を照射することでフォトカソード表面より電子線が放出される。

NEA フォトカソードを用いた電子源で優れた電子放出特性を得るには、NEA フォトカソード周囲を極高真空中に維持することが重要である[41]。このため、カソードパックが格納される活性化室と電子銃室にはそれぞれイオンポンプと NEG ポンプを搭載し、ベーキングにより各チャンバのベース圧力が 10^{-9} Pa 台となるように真空立上げを行った。電子銃室の真空が劣化すると、 H_2O や CO_2 など酸素を含むガスの吸着に伴う NEA 表面の劣化や、電子線放出時に残留ガスがイオン化してイオンが加速されてフォトカソードに衝突するイオンバックボンバードメントが生じて NEA 表面が劣化する[41]。フォトカソードの電流放出特性をできるだけ長期間維持するために、電子銃室とガンバルブの間を 3 段の差動排気構造とした。

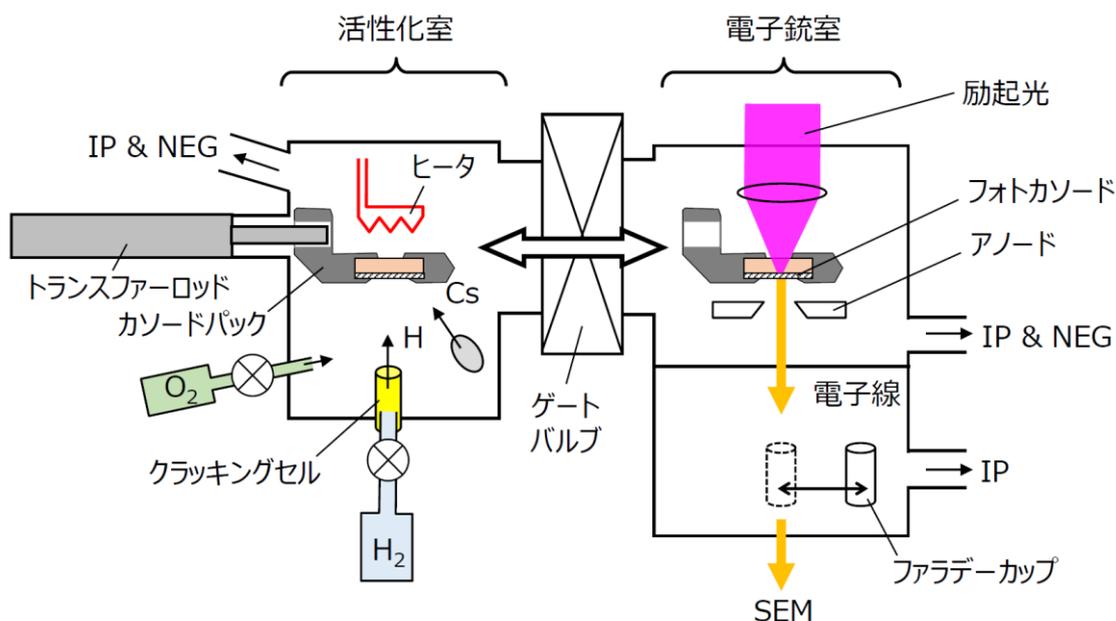


図 3-12. 新規開発した電子銃の構成概要図

フォトカソードの、表面クリーニング後に NEA 活性化プロセスを実施した。表面クリーニングは、フォトカソードの加熱処理と原子状水素を用いた表面クリーニング手法を適用した。NEA フォトカソードの活性化プロセスには、Cs 蒸発と O₂ 導入を交互に繰り返すヨーヨー法 (Yo-Yo method) を用いた[10]。活性化室内のフォトカソード、励起光源、Cs 源、O₂ 源の配置を図 3-13 に示す。励起光は集光せずに電圧-15 V を印加したフォトカソードに流れる電流を計測しながら活性化プロセスを実行した。

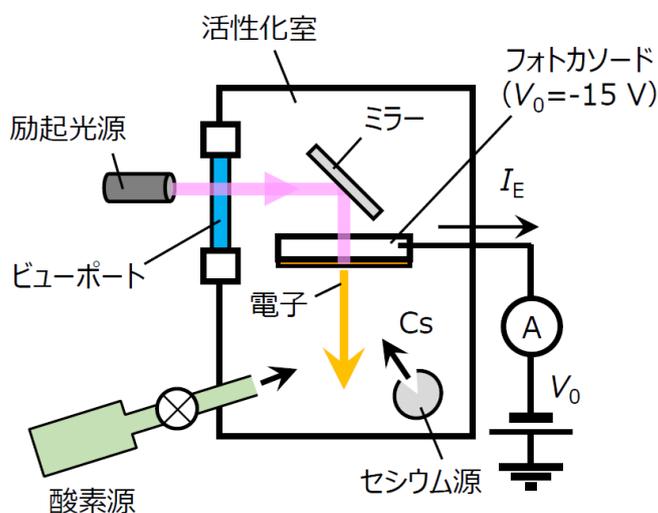


図 3-13. フォトカソード活性化時のエミッション電流と圧力の時間変化

活性化プロセスにおいて、Cs 蒸発と O₂ 導入を交互に 3 回繰り返した時の光照射によるエミッション電流と小型活性化室内の圧力の時間変化の一例を図 3-14 に示す。Cs の導入に伴いエミッション電流が増大し、O₂ 導入に伴いさらに電流が増大する。この時の活性化条件では、3 回目の O₂ 導入時にエミッション電流が最大となったため、この後に Cs 導入を 3~4 分実施し、フォトカソードを電子銃室に搬送した。Cs の導入に伴いエミッション電流が増大し、O₂ 導入に伴いさらに電流が増大する。この時の活性化条件では、3 回目の O₂ 導入時にエミッション電流が最大となったため、この後に Cs 導入を 3~4 分実施し、フォトカソードを電子銃室に搬送した。

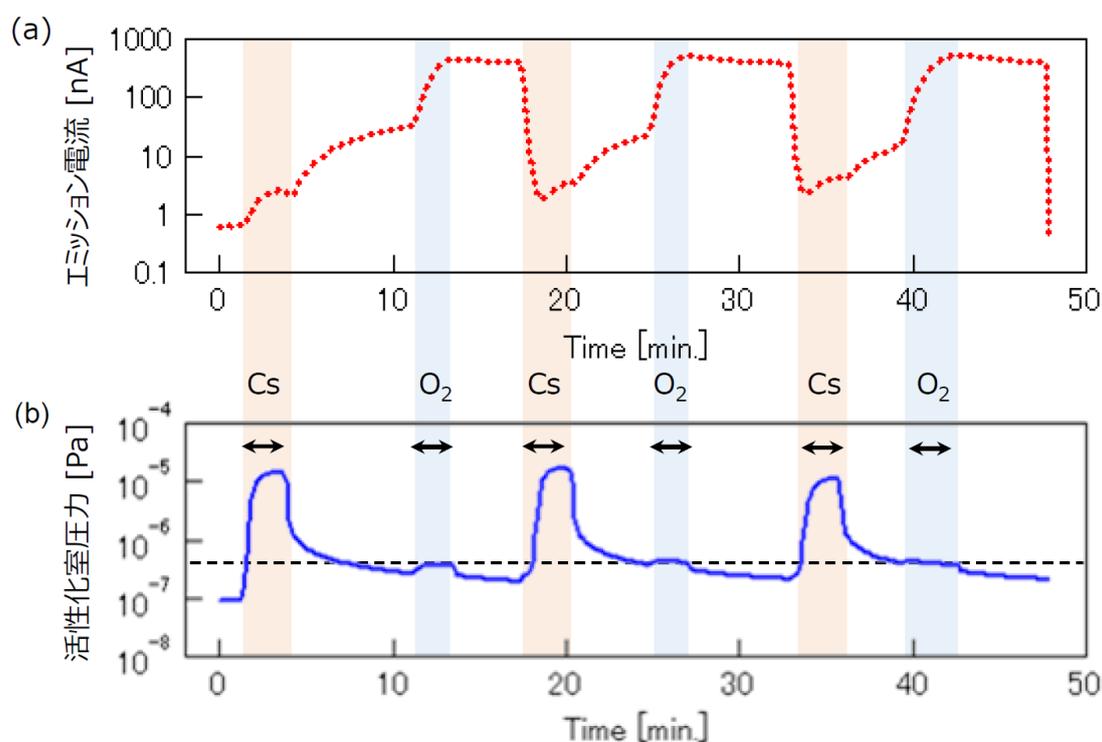


図 3-14. フォトカソードの NEA 活性化プロセス時の
(a) エミッション電流と (b) 活性化室内の圧力の時間変化

3.7 結論

半導体フォトカソードの最表面を事前に清浄化した後に Cs と O₂ を吸着させる NEA 活性化処理を実施することで、フォトカソード内部の伝導帯の最下端のエネルギー準位と比べて真空準位が下がった状態 (NEA 表面) を実現した。フォトカソードに励起光を照射し、活性層の価電子帯から伝導帯に励起された電子を、放出させる。照射励起光の波長は半導体のバンドギャップエネルギーと同程度にすることで、放出される電子のエネルギーのばらつきを小さくし、エネルギー幅の小さい (単色性の良い) 電子線を得る。一般的に NEA 表面か

ら放出される電子のエネルギー幅は <0.2 eV であり、既存の CFE 電子源よりも小さい。

また、GaAs を活性層に用いたフォトカソードは有効質量が小さいこと、バンドギャップエネルギーの光子エネルギーで励起することにより横方向の運動量の広がり抑制を抑制することができるため、真空領域に放出される電子の放出立体角が小さい点を特長としている。これに加えて、本研究では GaP 基板上にエピタキシャル成長した p 型 GaAs を活性層とするフォトカソードを用いており、励起光はフォトカソードの裏面近傍に配置した光学レンズを用いて高 NA で集光できる。これにより、活性層上の励起光集光径をレンズ収差がなく回折限界に絞ることができるため、高輝度な電子銃として利用することができる。使用した高輝度単色フォトカソードは最表面の不純物濃度が 10^{19} cm⁻³ 程度と大きくなっており、NEA 表面から高い電流密度で電子を放出できる。これらの特性により、高輝度特性が得られ、Schottky 電子銃と同程度の輝度となる。

高輝度単色 NEA フォトカソードを SEM の電子源として利用するために、活性化室と電子銃室から成る電子銃を作成した。真空立上げを実施して 10^{-9} Pa 台の極高真空となった電子銃室に NEA 活性化したフォトカソードを搬送し、フォトカソードの裏面より励起光を照射して裏面近傍に搭載した集光レンズを用いて集光径 $\phi 1$ μm となることを確認した。

第3章の参考文献

- [1] N. Yamamoto, M. Yamamoto, M. Kuwahara, R. Sakai, T. Morino, K. Tamagaki, A. Mano, A. Utsu, S. Okumi, T. Nakanishi, M. Kuriki, C. Bo, T. Ujihara, and Y. Takeda, Thermal emittance measurements for electron beams produced from bulk and superlattice negative electron affinity photocathodes, *J. Appl. Phys.* 102, 024904 (2007).
- [2] 浜松フォトニクス株式会社 編集委員会, 光電子増倍管 PHOTOMULTIPLIER TUBE その基礎と応用 第4版, 2017年
- [3] J. Feng, H. J. Shin, J. R. Nasiatka, W. Wan, A. T. Young, G. Huang, A. Comin, J. Byrd, and H. A. Padmore, An x-ray streak camera with high spatio-temporal resolution, *Appl. Phys. Lett.* 91, 134102 (2007).
- [4] D. Kiliani, A. Herguth, G. Micard, J. Ebser, G. Hahn, Time-resolved photoluminescence imaging with electronic shuttering using an image intensifier unit, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, Vol. 106, 55-59 (2012).
- [5] K. Chrzanowski, Review of night vision technology, *Opto-Electron. Rev.* 21 (2) 153-181 (2013).
- [6] O. Zandi, A. E. Sykes, R. D. Cornelius, F. M. Alcorn, B. S. Zerbe, P. M. Duxbury, B. W. Reed and R. M. Veen, Transient lensing from a photoemitted electron gas imaged by ultrafast electron microscopy, *Nat. Commun.* 11, 3001 (2020).
- [7] X. Fu, B. Chen, J. Tang, M. T. Hassan, A. H. Zewail, Imaging rotational dynamics of nanoparticles in liquid by 4D electron microscopy, *Science* Vol. 355, Issue 6324, 494-498 (2017)
- [8] K. C. Collins, et al., Development of Scanning Ultrafast Electron Microscope Capability, Sandia report, 2016
- [9] X. Fu, et al., Exciton Drift in Semiconductors under Uniform Strain Gradients: Application to Bent ZnO Microwires, *ACS Nano* 2014, 8, 4, 3412-3420
- [10] 大嶋卓, 電子顕微鏡用高輝度単色電子源の研究, 早稲田大学博士論文, 2013年
- [11] N. Yamamoto, T. Nakanishi, A. Mano, Y. Nakagawa, S. Okumi, M. Yamamoto, T. Konomi, X. Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Ohshima, T. Saka, T. Kato, H. Horinaka, T. Yasue, T. Koshikawa, and M. Kuwahara, High brightness and high polarization electron source using transmission photocathode with GaAs-GaAsP superlattice layers, *J. Appl. Phys.* 103, 064905 (2008).
- [12] T. Nakanishi, A. Mano, Y. Nakagawa, M. Kuwahara, S. Okumi, N. Yamamoto, X. G.

- Jin, T. Ujihara, Y. Takeda, M. Yamamoto, M. Hashimoto, M. Suzuki, T. Yasue, T. Koshikawa, T. Saka, T. Kato, and H. Horinaka, Spin polarized electron source technology transferred from HE accelerators to LE electron microscopes, Proceedings of Particle Accelerator Society Meeting 2009, JAEA (2009)
- [13] 佐貝 潤一, 光学機器の基礎, 森北出版株式会社, 2013 年
- [14] M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Saitoh, X. Jin, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and N. Tanaka, Coherence of a spin-polarized electron beam emitted from a semiconductor photocathode in a transmission electron microscope, *Appl. Phys. Lett.* 105, 193101 (2014).
- [15] M. Kuwahara, S. Kusunoki, X. G. Jin, T. Nakanishi, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, and N. Tanaka, 30-kV spin-polarized transmission electron microscope with GaAs–GaAsP strained superlattice photocathode, *Appl. Phys. Lett.* 101, 033102 (2012).
- [16] Makoto Kuwahara, Yoshito Nambo, Kota Aoki, Kensuke Sameshima, Xiuguang Jin, Toru Ujihara, Hidefumi Asano, Koh Saitoh, Yoshikazu Takeda, and Nobuo Tanaka, The Boersch effect in a picosecond pulsed electron beam emitted from a semiconductor photocathode, *Appl. Phys. Lett.* 109, 013108 (2016).
- [17] 桑原 真人, スピン偏極パルス透過電子顕微鏡の開発, まてりあ 第 58 巻 第 5 号 pp.269-274 (2019 年).
- [18] 中西 疆, スピン電子顕微鏡の実用化をめざして (Application of Spin Polarized Electrons for Electron Microscopes), 顕微鏡 Vol. 44, No.2, pp. 104-110 (2009 年).
- [19] Z. Chen, X. Jiang, J. Li, S. Li, and L. Wang, Electron energy and angle distribution of GaAs photocathodes, *J. Appl. Phys.* 114, 033523 (2013)
- [20] D. A. Orlov, H. Fadil, M. Grieser, C. Krantz, J. Hoffmann, O. Novotny, S. Novotny, and A. Wolf, Electron cooling with photocathode electron beams applied to slow ions at TSR and CSR, Proceedings of COOL 2007
- [21] J. Zou, B. Chang, Z. Yang, Y. Zhang, and J. Qiao, Evolution of surface potential barrier for negative-electron-affinity GaAs photocathodes, *J. Appl. Phys.* 105, 013714 (2009).
- [22] 桑原 真人, 中西 疆, 竹田 美和, 田中 信夫, スピン偏極パルス透過電子顕微鏡の開発—偏極電子源の原理とその応用—, 顕微鏡 Vol. 48, No. 1, pp. 3-8 (2013).
- [23] N. Chanlek, Quantum Efficiency Lifetime Studies using the Photocathode Preparation Experimental Facility Developed for the ALICE Accelerator, The

University of Manchester for the degree of Doctor of Philosophy (2011).

- [24] N. Chanlek, J. D. Herbert, R. M. Jones, L. B. Jones, K. J. Middleman, and B. L. Militsyn, The degradation of quantum efficiency in negative electron affinity GaAs photocathodes under gas exposure, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 47, 055110 (2014).
- [25] J. K. Bae, L. Cultrera, P. DiGiacomo, and I. Bazarov, Rugged spin-polarized electron sources based on negative electron affinity GaAs photocathode with robust Cs₂Te coating, *Appl. Phys. Lett.* 112, 154101 (2018).
- [26] S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, Wiley (2006).
- [27] 渡川 和晃, 超格子半導体によるナノ秒マルチバンチ偏極電子ビームの生成, 名古屋大学博士論文, 1998 年
- [28] 下山 宏, 藤田 真, 電子銃・電子源 (前篇) —物理・光学的基礎—, 顕微鏡 Vol. 52, No. 3, pp160-165 (2017).
- [29] 岡崎 誠, 固体物理学 工学のために, 裳華房, 2002 年.
- [30] R. L. Bell, *Negative electron affinity devices*, Oxford, 1973.
- [31] T. Ohshima, *Microelectron. Eng.* 67–68, 951–954 (2003).
- [32] T. Ohshima and M. Kudo, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43, 8335–8340 (2004).
- [33] G. A. Mulhollan, A. V. Subashiev, J. E. Clendenin, E. L. Garwin, R. E. Kirby, Photovoltage effects in photoemission from thin GaAs layers, *Phys. Lett. A*, Vol. 282, 4, 309-318 (2001).
- [34] M. Esashi, A. Kojima, N. Ikegami, H. Miyaguchi and N. Koshida, Development of massively parallel electron beam direct write lithography using active-matrix nanocrystalline-silicon electron emitter arrays, *Microsyst. Nanoeng.* Vol. 1, 15029 (2015).
- [35] A. Mohammadi-Gheidari, C. W. Hagen, and P. Kruit, Multibeam scanning electron microscope: Experimental results, *J. Vac. Sci. Technol. B* 28, C6G5 (2010).
- [36] 原田 研, 電子線ホログラフィー顕微鏡法の開発, 大阪大学博士論文, 1991 年.
- [37] L. Zhang, J. P. Hoogenboom, B. Cook, and P. Kruit, Photoemission sources and beam blankers for ultrafast electron microscopy, *Struct. Dyn.* 6, 051501 (2019).
- [38] R. J. Moerland, I. G. C. Weppelman, M. W. H. Garming, P. Kruit, J. P. Hoogenboom, Time-resolved cathodoluminescence microscopy with sub-nanosecond beam blanking for direct evaluation of the local density of states, *Opt. Express* 24 (21) 24760-24772 (2016).

- [39] L. Zhang, M. W. H. Garming, J. P. Hoogenboom, P. Kruit, Beam displacement and blur caused by fast electron beam deflection, *Ultramicrosc.* 211, 112925 (2020).
- [40] S. Meuret, M. S. Garcia, T. Coenen, E. Kieft, H. Zeijlemaker, M. Lätzel, S. Christiansen, S.Y. Woo, Y.H. Ra, Z. Mi, A. Polman, Complementary cathodoluminescence lifetime imaging configurations in a scanning electron microscope, *Ultramicrosc.* 197, 28–38 (2019).
- [41] 最新 実用真空技術総覧 編集委員会 編, 最新 実用真空技術総覧, NTS, 2019 年

4. 低照射エネルギーの像分解能評価

4.1 緒言

本研究で作製した高輝度 NEA フォトカソードを用いた電子源は、Schottky 電子源並みの高輝度特性 ($>1 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$)、CFE 電子源よりも小さいエネルギー幅 ($<0.2 \text{ eV}$) を特長とすることを第 3 章で述べた。高輝度 NEA フォトカソードを電子源とする SEM により、低照射エネルギー域の観察性能が向上するかを調べた。このため、作製した光励起電子銃を SEM に搭載した。光励起電子銃を搭載した SEM の構成概略図を図 4-1 に、その外観写真を図 4-2 に示す。

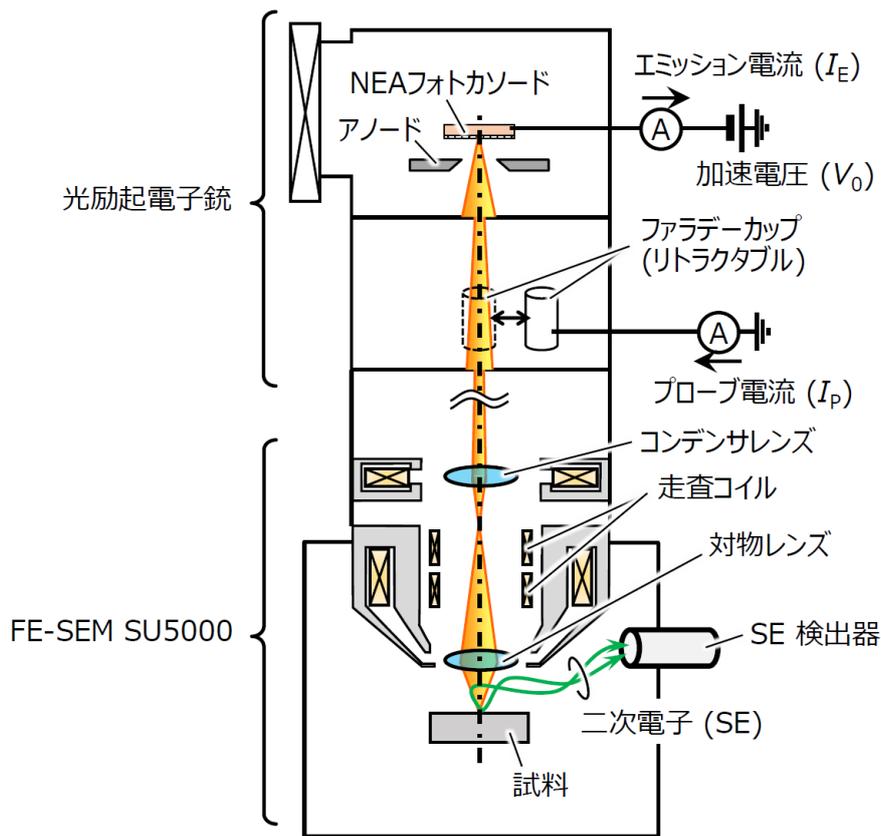


図 4-1. 光励起電子銃を搭載した SEM の構成概要図

本章では高輝度 NEA フォトカソードを連続光で励起し、発生する電子線をプローブ電子線として用いた。高輝度 NEA フォトカソードを用いた光励起電子銃の仮想光源径を評価し、その結果に基づき連続電子線の輝度を評価した後に、金粒子試料の SEM 像の分解能評価を実施した結果を述べる。分解能評価では、改造前の Schottky 電子源を搭載した SEM と改造後の光励起電子源を搭載した SEM を用いて、同じ金粒子試料の SEM 像を照射エネルギー 1 keV で取得し、DR 法による像シャープネス値を評価することで分解能値を比較した。

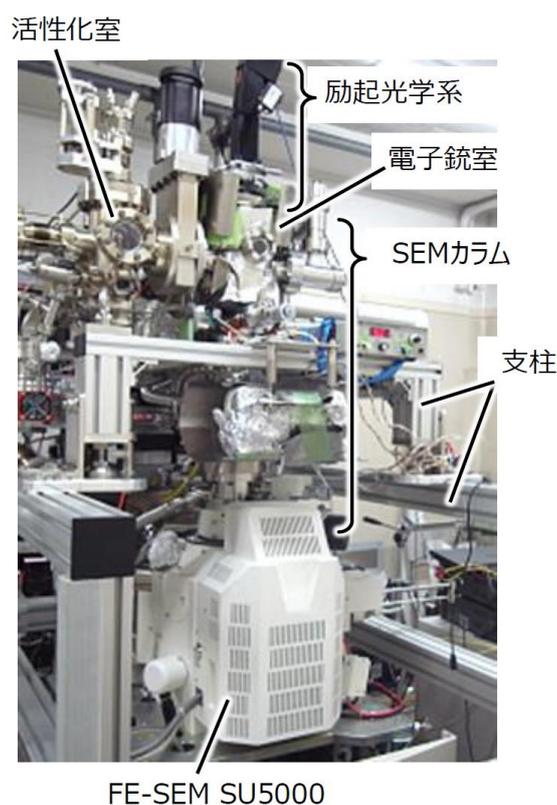


図 4-2. 光励起電子銃を搭載した SEM の外観写真

はじめに、取得した SEM 像の分解能の指標に用いた DR 法について説明する。DR 法は、ガウシアン強度分布を持つ電子線で微小粒子を SEM 観察した場合に、粒子のエッジ領域を垂直に横切る信号強度分布が誤差関数となることを前提としている[1-4]。SEM 像に含まれる粒子エッジ部の信号強度分布を誤差関数でフィッティングした時の立上がり幅を、像シャープネス値として定義する。本研究では、ガウス分布の強度がピーク値の $1/e$ (e : 自然対数の底) となる半径 (σ を標準偏差として $\sqrt{2}\sigma$) を取得した SEM 像に含まれる粒子エッジ部をランダムに評価した時の $\sqrt{2}\sigma$ の平均値を分解能の指標とした。以下では、DR 法による像シャープネス値を”DR 値”と略記する。DR 値は試料、観察倍率、検出信号などの観察条件に依存する点に注意し、粒径 20 nm 程度の金粒子試料を評価試料とし、製作した電子銃を搭載した SEM と、従来構成の Schottky 電子銃を搭載した SEM について、同一条件で取得した SEM 像の DR 値を比較した。

4.2 仮想光源径の評価

式(2-25)に基づき電子源の輝度を評価するには、図 4-3 に示すように、立体角 (開き半角: α_{VS}) を制限して測定してプローブ電流 (I_p) を測定、する必要がある。この時に、仮想光源径 (直径: $2r_{VS}$) を正確に評価する必要がある。

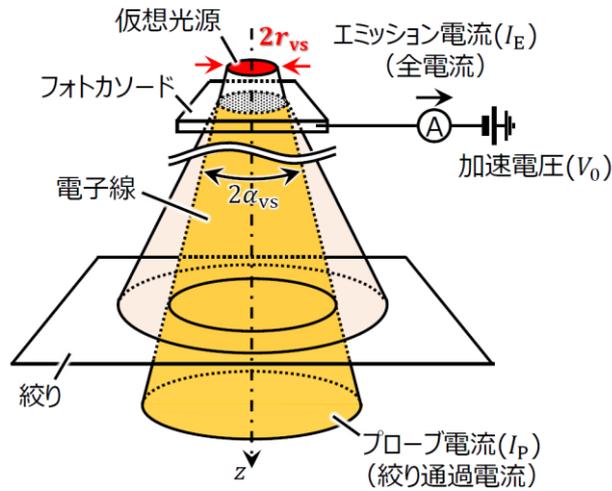


図 4-3. フォトカソードに対する励起光の集光条件を変えた時の電子光学系の模式図

通常の電子源では、電子光学系の条件を固定して仮想光源径を変えることは難しい。一方、光励起電子銃の場合は、フォトカソードに対する集光レンズの位置を光軸方向に変位させることで仮想光源径のみを変えることができる。本研究では、電子光学系の照射条件を固定して、仮想光源径を変えて取得した SEM 像のボケ量に基づいて光励起電子銃の仮想光源径を評価した。フォトカソードの励起光を活性層に集光した時とデフォーカスした時の、電子光学系の模式図を各々図 4-4. (a)(b)に示す。

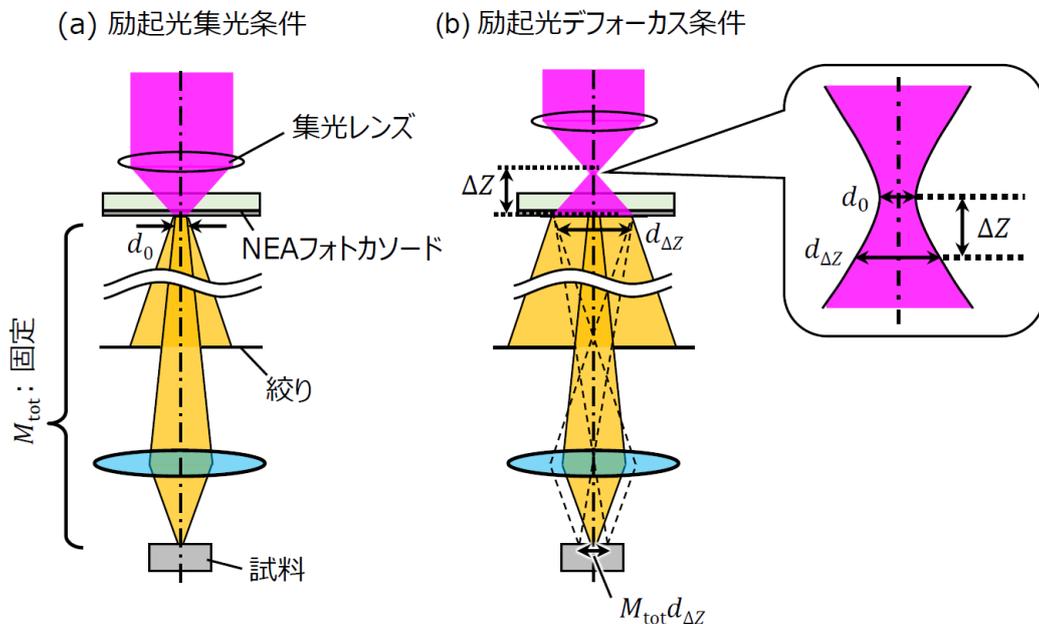


図 4-4. フォトカソードに対する励起光の集光条件を変えた時の電子光学系の模式図
励起光を (a) 活性層に集光した時、(b) デフォーカスした時 (デフォーカス量 : ΔZ)

簡単のため、フォトカソードに対し励起光をデフォーカスして照射してもフォトカソード表面から放出される電子線の初期角度は変化しないものとして説明する。励起光集光時は、試料上に投影される光源径は $M_{\text{tot}}d_0$ となる。この状態で励起光をデフォーカスすると、試料に対する照射開き角はほとんど変わらず、試料上に投影される光源径が $M_{\text{tot}}d_{\Delta Z}$ に増大する。実際の装置構成では、絞りと電子源の位置が離れて配置しているため開き角の変化が小さい。このため、球面収差、色収差、回折収差の変化は小さく、光源径が増大した影響のみがボケ量として観測できる。

本研究で用いた励起波長は $\lambda = 785 \text{ nm}$ であり、活性層に集光した時の集光径はビームウェスト径 $d_0 = 1.22 \lambda / \text{NA}$ で計算でき、 $1.9 \mu\text{m}$ となる。集光位置からのデフォーカス量 ΔZ の位置で、中心強度の $1/e^2$ の励起光のスポット径 $d_{\Delta Z}$ は、 n を媒質の屈折率として以下の式(4-1)によって計算される[5]。

$$d_{\Delta Z} = d_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4\lambda \Delta Z}{\pi n d_0^2} \right)^2} \quad (4-1)$$

この式に従うと、デフォーカス量 $\Delta Z =$ 数 $10 \mu\text{m}$ の時に $d_{\Delta Z} = \phi$ 数 μm となる。

より正確に仮想光源径を評価するには、フォトカソードとアノード電極の間に形成される電界レンズ作用を考慮する必要がある。励起光の集光径と電子源の仮想光源径との関係を調べるために、2次元電子光学シミュレータを用いて電界分布と電子軌道の計算を行った[6]。カソード電圧-1 kV、アノード電圧0 Vとし、照射エネルギー1 keVの時の電子線の軌道計算結果を図4-5. (a)~(c)に示す。

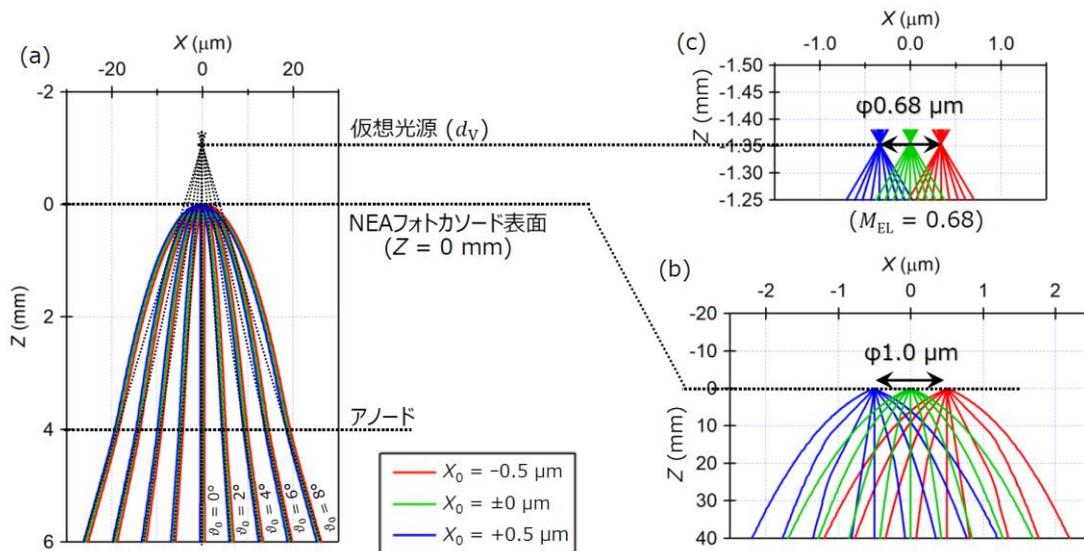


図4-5. (a) 電子の軌道計算結果、(b) フォトカソード表面の拡大図、
(c) 仮想光源付近の拡大図

励起光の集光径を $\phi 1 \mu\text{m}$ として、フォトカソード表面 ($Z_0 = 0 \mu\text{m}$) の $X_0 = -0.5 \mu\text{m}$ 、 $0 \mu\text{m}$ 、 $+0.5 \mu\text{m}$ より初期角度 $\theta_0 = 0, 2, 4, 6, 8 \text{ deg}$ で射出した電子の軌道を計算した。アノード通過領域を含む電子銃部の軌道計算結果を図 4-5. (a)に、フォトカソード表面の拡大図を図 4-5. (b)にアノード通過後の電子軌道を電子源側に外挿して各軌道の交点を調べた結果を図 4-5. (c)に示す。本研究の電極構成の場合、仮想光源はフォトカソード活性層の後方約 1.35 mm の位置に形成され、仮想光源径は励起光集光径の約 0.68 倍となる。このため、励起光源径 ($d_{\Delta Z}$) と仮想光源径 (δ_{VS}) の関係を定量的に検討する際には、電界レンズの縮小率 $M_{EL} = 0.68$ を考慮する必要がある、以下の式で計算される。

$$\delta_{VS} = d_{\Delta Z} M_{EL} \quad (4-2)$$

励起光のデフォーカス量を $\Delta Z = 10 \sim 50 \mu\text{m}$ の範囲で $10 \mu\text{m}$ ずつ変えて取得した金粒子試料の SEM 像を、各 SEM 像の DR 値と共に図 4-6 に示す。

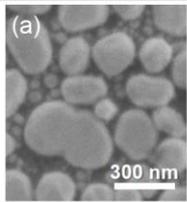
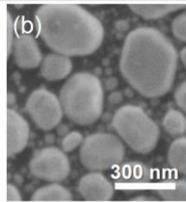
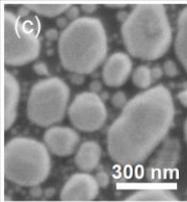
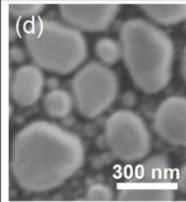
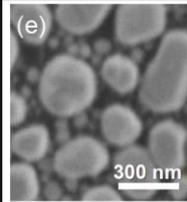
励起光 デフォーカス量	$\Delta Z = 10 \mu\text{m}$	$\Delta Z = 20 \mu\text{m}$	$\Delta Z = 30 \mu\text{m}$	$\Delta Z = 40 \mu\text{m}$	$\Delta Z = 50 \mu\text{m}$
SEM像					
DR値	7.6 nm	8.4 nm	8.9 nm	10.0 nm	11.6 nm

図 4-6. 励起光のデフォーカス量を変えて照射エネルギー 1 keV で取得した金粒子試料の SEM 像と DR 値 ($\sqrt{2}\sigma$) の評価結果
励起光のデフォーカス量 (a) $10 \mu\text{m}$ 、(b) $20 \mu\text{m}$ 、(c) $30 \mu\text{m}$ 、(d) $40 \mu\text{m}$ 、(e) $50 \mu\text{m}$

各 SEM 像で対物レンズ収差や縮小率など電子光学系の照射条件は一定のため、デフォーカス時のボケ量の増分は仮想光源径の増分に対応する。励起光のデフォーカス量を変えて取得した SEM 像 (図 4-6) の像シャープネス値を、励起光のデフォーカス量に対しプロットしたグラフを図 4-7 に示す。

$d_{\Delta Z} = 0 \mu\text{m}$ の時の像シャープネス値 5.8 nm は、電子源の仮想光源径以外の要因に起因するボケ量に対応する。このため、励起光をフォトカソードの活性層に集光した時の光源径に起因するボケ量は $d_0 = 1.8 \mu\text{m}$ の時の DR 値と 5.8 nm の差分から 1.29 nm となる。電子光学系の縮小率 M_{tot} を考慮すると、仮想光源の直径は $1.29 \mu\text{m}$ が得られる。式(4-2)を用いて $\delta_{VS} = d_0 \times M_{EL}$ から仮想光源径の理論値を計算すると $\delta_{VS} = 1.22 \mu\text{m}$ となり、実験的に得られた結果とよく整合することを確認できた。

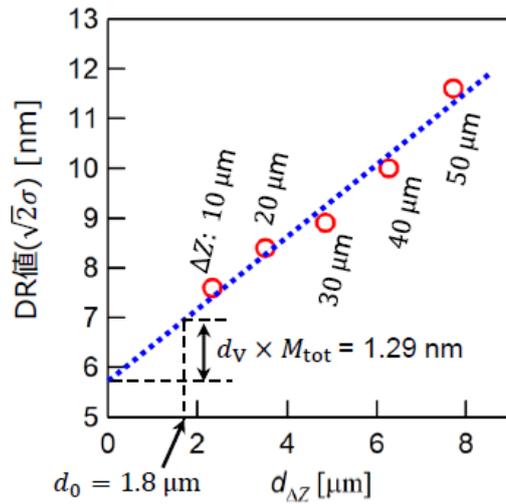


図 4-7. 励起光のデフォーカス量を変えて取得した金粒子試料の SEM 像に対する DR 値 ($\sqrt{2}\sigma$) の励起光源径依存性

4.3 連続電子線の輝度評価

実験的に評価した仮想光源径 $r_{VS} = \delta_{VS}/2 = 0.61 \mu\text{m}$ を用いて、式(2-25)を用いて光励起電子銃の換算輝度を評価した結果を図 4-8 に示す。励起光はフォトカソードの活性層に集光し、照射エネルギー 3 keV で測定したものである。フォトカソードに照射する励起光強度の増大に伴い換算輝度は増大するが、 $1.1 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ で飽和することがわかった。これは、Schottky 電子源と同程度の高輝度が得られることを確認した。換算輝度が励起光強度に対し飽和する要因については、5 章にて詳細を考察する。

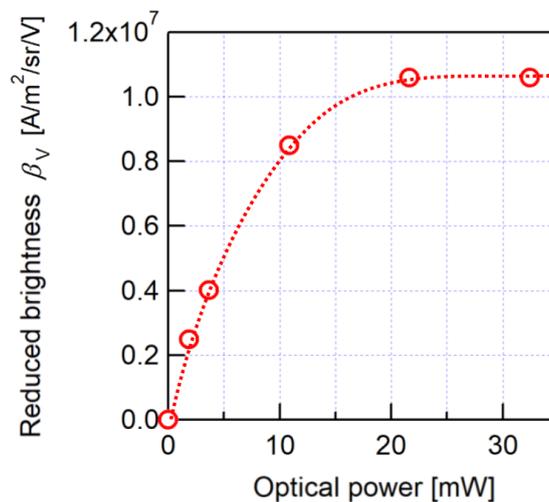


図 4-8. 連続電子線の換算輝度の励起光強度依存性（照射エネルギー 3 keV）

4.4 分解能評価結果

光励起電子銃を搭載した SEM と、改造前の Schottky 電子銃を搭載した従来構成の SEM で取得した、金粒子試料の照射エネルギー1 keV の SEM 像を各々図 4-9. (a)(b)に示す。

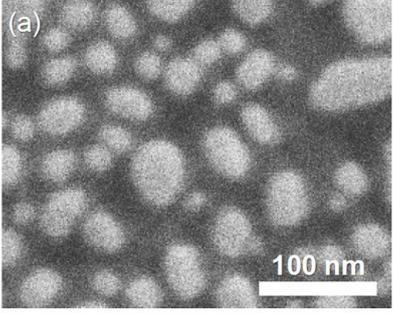
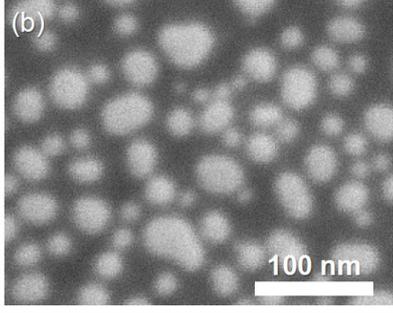
電子源	光励起電子源	Schottky電子源
SEM像		
DR値	6.4 nm	7.6 nm

図 4-9. 照射エネルギー1 keV で取得した金粒子試料の SEM 像
(a) 光励起電子銃を搭載した SEM、(b) Schottky 電子銃を搭載した SEM

開発した SEM では励起光（連続光）をフォトカソードの活性層に集光し、対物レンズの1段電子源側に搭載したコンデンサレンズの励磁量を変えて取得した SEM 像の中で、金粒子の輪郭が最も鮮明に観察される条件を最適条件とした。光励起電子銃を搭載した SEM の最適開き角は電子線の軌道計算結果に基づき $\alpha_{opt} \sim 8 \text{ mrad}$ と算出され、Schottky 電子銃を搭載した従来 SEM の最適開き角 $\alpha_{opt} \sim 4 \text{ mrad}$ から増大することがわかった。DR 値は、改造前の 7.6 nm から本開発の SEM では 6.4 nm に約 16%改善することを確認した。

改造前後で得られた SEM 像の像シャープネス値の変化の妥当性について、以下のビーム径の計算式を用いて検証した[7, 8]。

$$d_p \propto \sqrt{\left(0.34 C_{ch} \alpha_s \frac{\Delta E}{V_0}\right)^2 + \left\{ \left(\frac{4I_p}{\pi^2 \alpha_s^2 \beta_V V_0}\right)^{\frac{1.3}{2}} + \left[\left(0.54 \frac{\lambda_e}{\alpha_s}\right)^4 + (0.18 C_{sp} \alpha_s^3)^4 \right]^{\frac{1.3}{4}} \right\}^{\frac{2}{1.3}}} \quad (4-3)$$

このビーム径の計算式は、式(2-7)に示したビーム径の計算式と同様に、球面収差（右辺第4項）、色収差（右辺第1項）、回折収差（右辺第3項）、光源径（右辺第2項）を考慮して計算されるビーム径で、各収差成分が2乗和とは異なる重み付けで計算される。特に低照射エネルギー域で取得した SEM 像の DR 値と比較する場合は、各収差の2乗和で計算されるビーム径の計算式（式(2-7)）よりも経験的に整合性が良いため、式(4-3)の計算式を用いた。

光励起電子銃を搭載する前の Schottky 電子源が搭載された SEM の分解能条件では仮想光源径が十分に縮小される条件で利用されるため、光源径は考慮していない。一方、改造後の光励起電子銃が搭載された SEM では、光源径の影響を加味した計算を行った。式(4-3)で、第 2 項の光源径は照射電流と換算輝度の実測値に基づき計算した。

光励起電子銃を搭載した SEM と Schottky 電子銃を搭載した従来 SEM のビーム径の開き角依存性を各々図 4-10. (a)(b)に示す。ビーム径を計算する際に、電子銃のエネルギー幅は光励起電子銃を搭載した SEM では $\Delta E = 0.2 \text{ eV}$ 、Schottky 電子銃を搭載した従来 SEM では $\Delta E = 0.6 \text{ eV}$ とした。比較しやすくするため、図 4-10 のグラフの縦軸のビーム径は Schottky 電子銃を搭載した従来 SEM の最適ビーム径を 1 に規格化した数値で示している。

計算結果では高輝度 NEA フォトカソードを用いた光励起電子銃を搭載した SEM では、従来の Schottky 電子銃を搭載した SEM と比べてビーム径の最適値が小さくなり、最適開き角は大きくなることを確認できた。以上の結果から、本研究で作製した光励起電子源の高輝度かつ単色である特性を検証できた。得られた SEM 像の像シャープネス値とビーム径の計算値との比較結果に基づき、NEA 電子源のエネルギー幅は 0.2 eV 以下と考えられる。

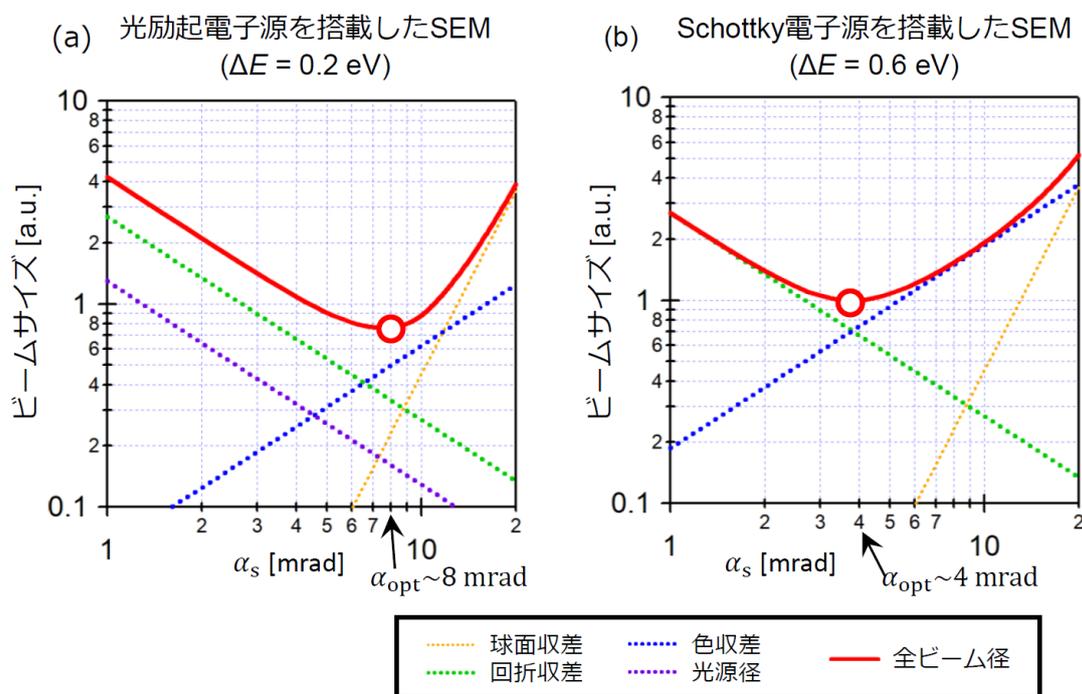


図 4-10. ビーム径の計算結果

(a) 光励起電子源搭載 SEM、(b) Schottky 電子源搭載 SEM (従来構成)

4.5 他の色収差補正技術との比較

高輝度単色フォトカソードを用いた光励起電子源の優位性について、従来電子源と収差補正器やモノクロメータを組合せた場合と比較した結果を表 4-1 にまとめる。

表 4-1. 光励起電子源の技術水準の比較

手法	光励起電子源 (本研究)	色収差 (Cc) 補正器	モノクロメータ
実効輝度の低下	なし ○	なし ○	あり ×
使用条件の制限 (照射エネルギー、 WD、照射電流)	なし ○	あり ×	あり ×

収差補正技術は、電子光学系の球面収差係数 (C_{sp}) や色収差係数 (C_{ch}) を低減するために凹レンズ作用を発生させる技術である。回転対称な電磁場では電子線に対する凹レンズ作用を単独で発生させることができないため[9]、多極子場を用いて異方的に発生させた凹レンズ作用を利用する[10, 11]。収差補正器を適用する場合は任意の電子源を利用でき、通常は Schottky 電子源や CFE 電子源などの高輝度電子源が搭載される。SEM では形態観察や表面分析などに利用されるため、用途に応じて照射エネルギーや照射プローブ電流を様々な条件に設定できることが好ましい。一方で、収差補正器を搭載した電子顕微鏡では補正器に対する照射電子線の軸調整が重要となる。使用される全条件に収差補正機能を適用することは現実的には難しい。

一方、モノクロメータは電子線のエネルギー幅を低減する技術である。電子線を偏向した時の偏向量が電子線のエネルギーに依存することを利用し、エネルギーの揃った電子線のミスリットを通過させて単色性の良い電子線を得る[12-14]。このため、エネルギー幅の小さい電子線が得られる条件では照射プローブ電流量が小さい。モノクロメータで低減されるエネルギー幅は、偏向して軌道分散させた電子線が通過するスリット幅に依存する。スリット幅を小さくすることでエネルギー幅を小さくできる一方、照射プローブ電流が低下する。Thermofisher Scientific 社の SEM では、Unicolor (以下、UC) という名称で Schottky 電子銃と一体化するコンパクトな構成のモノクロメータを SEM に搭載しており[7]、電子線の偏向方法を変えることでモノクロメータの on/off を切替えて使用できるようにしている。これにより、エネルギー幅が小さい UC on の時は照射プローブ電流が小さい範囲に制限される。他方、エネルギー幅の大きい UC off の時は照射プローブ電流が大きい範囲に設定できる特長を持つ。UC off の時のエネルギー幅は 0.8 eV であるのに対し、UC on の時のエネルギー幅は <0.2 eV と報告されている[7]。

以上の事実を踏まえて、照射エネルギー0.5 keV、1.0 keV、5.0 keVについて、表 4-2 に示す条件で式(4-3)を用いてビーム径の照射プローブ電流依存性を計算した結果を図 4-11 に示す。色収差補正器を適用した場合 (SE&CcCorr) は、Schottky 電子銃 (エネルギー幅 : 0.6 eV) を搭載し、色収差係数は $C_{ch} = 0 \text{ mm}$ とした (球面収差係数は $C_{sp} = 1 \text{ mm}$ を維持)。モノクロメータを適用した場合 (SE&UC) は、エネルギー幅が 0.6 eV から 0.15 eV に小さくなるに伴いスリットを通過する電子の量が $(0.15/0.6)^2$ 倍となるものとして、電子源輝度 $1.2 \times 10^6 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ を仮定した。

表 4-2. 図 4-11 のビーム径計算条件

手法	NEA 光励起電子源 (本研究)	SE&CcCorr (色収差補正器)	SE&UC (モノクロメータ)	SE (Schottky)
C_{sp}	1 mm	1 mm	1 mm	1 mm
C_{ch}	1 mm	0 mm	1 mm	1 mm
エネルギー幅	0.2 eV	0.6 eV	0.15 eV	0.6 eV
輝度	$2 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$	$2 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$	$1.2 \times 10^6 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$	$2 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$

照射プローブ電流 0.1 pA~1 nA の範囲で最適ビーム径を比較すると、本研究の光励起電子源では、全条件で Schottky 電子源の場合やモノクロメータを組合せた場合と比べて小さいビーム径が得られる。これは、光励起電子源のエネルギー幅が小さいことと、高輝度であることが要因である。Schottky 電子源やモノクロメータを用いた場合に対する光励起電子銃の最適ビーム径の改善量は、照射エネルギーが小さい条件ほど大きい。なお、色収差補正技術との比較では、本研究の光励起電子源を用いた場合と概ね同等のビーム径となっている。これは、この計算で色収差補正器により球面収差は補正されないものとしており、照射エネルギー5 keV 以下では、最適ビーム径が球面収差で制限されるためである。

限られた観察条件について低照射エネルギー域の分解能を改善するのであれば、照射プローブ電流数 pA でエネルギー幅を小さくできれば良く、色収差補正器やモノクロメータを適用することで所望の高い空間分解能が得られる。一方で、SEM 観察では SE と比べて発生量が少ない BSE の SEM 像を高コントラストで得るために、照射プローブ電流数 100 pA が必要となる場合がある。このような観察条件を想定した場合は、高輝度単色フォトカソードを用いた光励起電子源を搭載した SEM を用いることで、比較的大きい照射プローブ電流で他の装置構成と比べて小さいビーム径が得られる。また、使用できる照射エネルギー、WD、照射プローブ電流などの幅広い観察条件を制限せずに、エネルギー幅 0.2 eV より小さい照射電子線を利用できる点で高輝度単色フォトカソードを用いた光励起電子源を搭載した SEM が優位である。

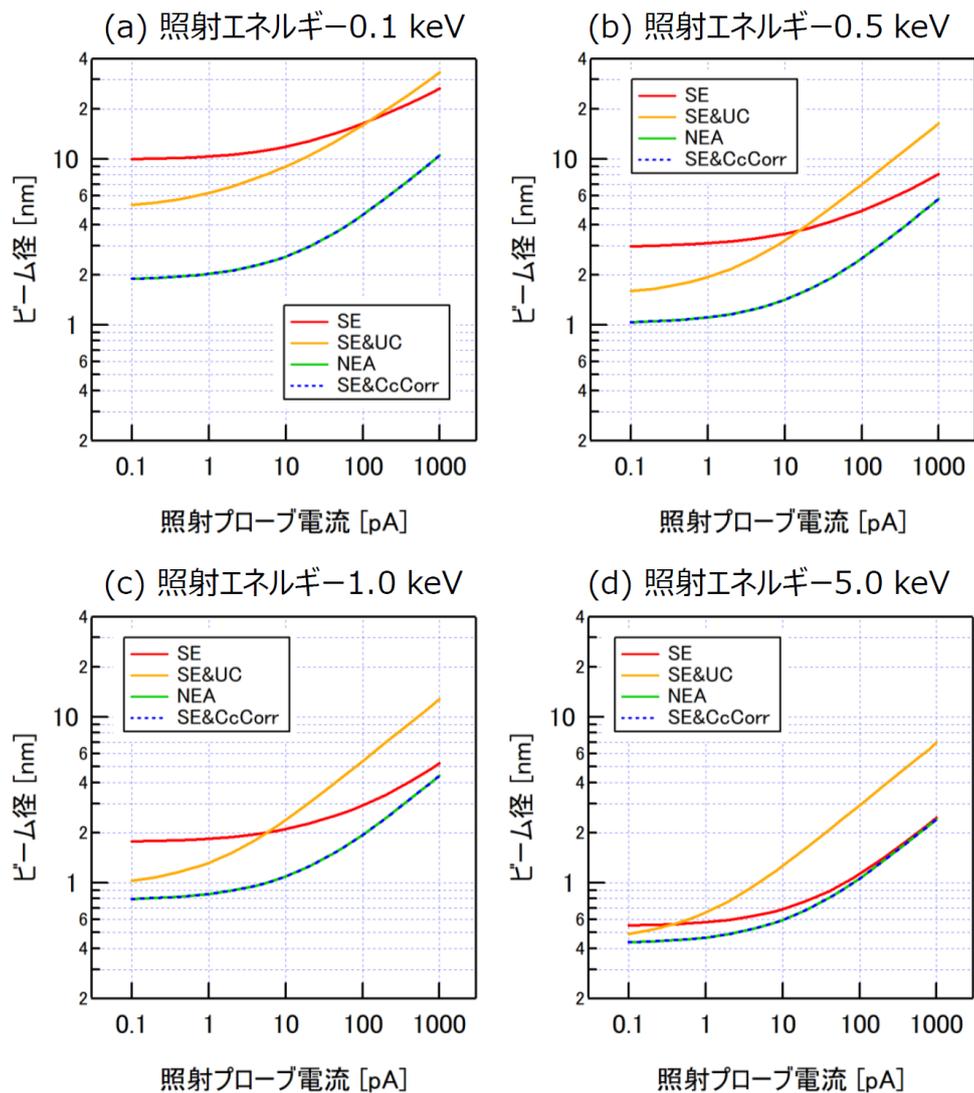


図 4-11. ビーム径の照射プローブ電流依存性の計算結果
照射エネルギー (a) 0.1 keV、(b) 0.5 keV、(c) 1.0 keV、(d) 5.0 keV

4.6 結論

高輝度単色 NEA フォトカソードを電子源とする電子銃を走査電子顕微鏡 (SEM) SU5000 に搭載した。低加速域の空間分解能向上の検証を目的として、励起光源として波長 785 nm の CW 光源を用い、連続電子線を用いて実機評価を実施した。

励起光をデフォーカスして取得した SEM 像のボケ量に基づき、フォトカソード活性層に励起光を集光した時の仮想光源径として $\phi 1.29 \mu\text{m}$ を得た。この結果に基づき評価した照射エネルギー 3 keV の時の連続電子線の換算輝度は、最大で $1.1 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ となった。

照射エネルギー 1 keV で取得した金微粒子試料の SEM 像について、分解能の指標となる

DR 法による像シャープネス値 ($\sqrt{2\sigma}$) を評価した。結果、改造後の光励起電子銃を搭載した SEM で取得した SEM 像の像シャープネス値は、Schottky 電子銃を搭載した改造前と比べて約 16 %改善することを確認した。また、ビーム径の計算結果に基づくと、最適開き角は改造後 8 mrad となり改造前の 3 mrad から増大することがわかった。仮想光源径を考慮したビーム径の計算結果に基づき、NEA 電子源のエネルギー幅は約 0.2 eV と考えられる。

以上の結果から、高輝度単色 NEA フォトカソードを用いた電子源は既存の CFE 電子源よりも小さいエネルギー幅 (<約 0.2 eV) かつ Schottky 電子源と同程度の換算輝度 ($\sim 1 \times 10^7$ A/sr/m²/V) を持ち、低加速域で高い空間分解能観察と高スループット分析を両立可能な SEM 向けの電子源として有望である。

第4章の参考文献

- [1] ISO/TS 24597 Technical specification ; Microanalysis – Scanning electron microscopy – Methods of evaluating image sharpness (2011).
- [2] 佐藤 貢, はじめての精密工学 走査電子顕微鏡 (SEM) の像シャープネス評価法, 精密工学会誌 Vol. 79, No. 11, 1009-1012 (2013).
- [3] 佐藤 貢, 走査電子顕微鏡の像シャープネス評価法の ISO 標準化, 標準化現場ノート 第23回, 映像情報メディア学会誌 Vol. 67, No. 2, pp.141-143 (2013).
- [4] 熊谷 和博, SEM によるナノ計測を支える認証標準物質, NMIJ 研究トピックス No. 10 (2019).
- [5] 川田 善正, はじめての光学, 講談社 (2014 年)
- [6] Y. Ose, H. Sato, H. Morishita, and T. Kohashi, Simulation for the Development of Electron Guns and Detection Systems of Modern Field Emission Scanning Electron Microscopes, *Microsc. Microanal.* 21(S4), 200 (2015).
- [7] R. Young, S. Henstra, J. Chmelik, T. Dingle, A. Mangnus, G. Veen, and I. Gestmann, XHR SEM: enabling extreme high resolution scanning electron microscopy, *Proc. SPIE* 7378, 737803 (2009).
- [8] D. C. Bell and N. Erdman, *Low Voltage Electron Microscopy Principles and Applications* (Wiley, 2013).
- [9] O. Scherzer, The theoretical resolution limit of the electron microscope, *J. Appl. Phys.* 20, 20 (1949)
- [10] H. R. Rose, Historical aspects of aberration correction, *J. Electron Microsc.* 58, 77–85 (2009).
- [11] J. Zach and M. Haider, Aberration correction in a low voltage SEM by a multipole corrector, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 363, 316-325 (1995).
- [12] K. Kimoto, Practical aspects of monochromators developed for transmission electron microscopy, *Microscopy*, 2014, 337–344 (2014).
- [13] T. Ogawa and B. Cho, A new monochromator with multiple offset cylindrical lenses, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 772, 5-13 (2015).
- [14] T. Ogawa and B. Cho, A new monochromator with multiple offset cylindrical lenses 2: Aberration analysis and its applications, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 800, 18–28 (2015).

5. 光励起パルス電子銃の輝度評価

5.1 緒言

光励起電子銃では励起光源に短パルス幅光源を用いることで、フォトカソードより発生する電子線を短パルス化することができる。近年、電子顕微鏡にパルス電子銃を搭載し、高い空間分解能と高い時間分解能を両立した新しい計測手法に関心が集まっている[1]。本研究で用いた高輝度単色フォトカソードを用いた電子源を用いることで、最短パルス幅が約 10 ps のパルス電子線を発生することができる[2]。高輝度単色フォトカソードより放出される電子線は光電効果を利用したものよりもエネルギー幅が小さく、励起光をパルス化して得られるパルス電子線についても単色性が良い。このため、高輝度単色フォトカソードを用いたパルス電子銃は低照射エネルギー域の計測で優位である。

以上より、試料の薄膜化が不要でデバイス試料を実動作環境で非破壊計測可能できる点で優位な SEM にパルス電子源を搭載した場合について検討した。半導体デバイスの製造工程では、パターンの寸法計測に nm オーダの空間分解能を持つ測長 SEM が利用されているが、パルス電子線を利用することで、従来の寸法計測では計測するのが難しい界面や接合面の欠陥などを可視化できる可能性がある。パルス電子源を搭載した SEM による、パルス電子線を応用した計測手法を図 5-1. (a)~(c)に示す。各手法について、以下で詳細を述べる。

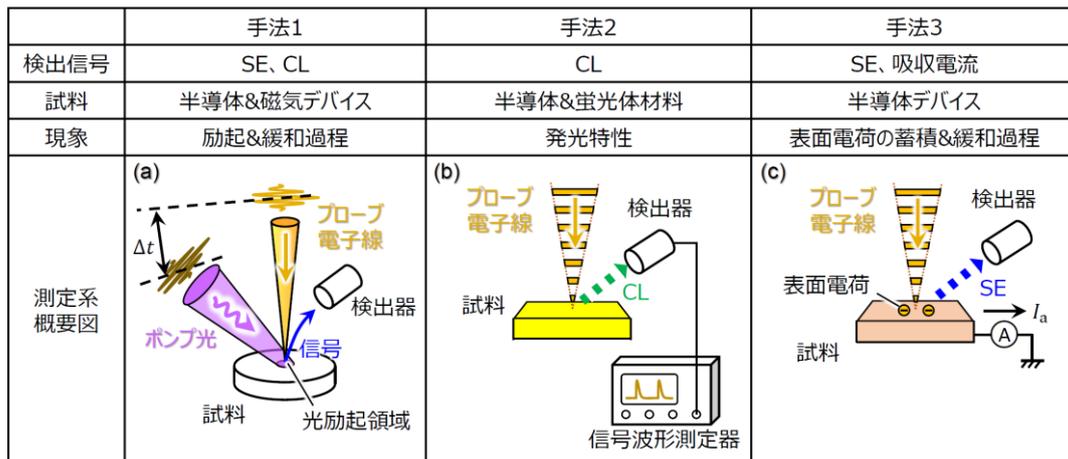


図 5-1. パルス電子源を搭載した SEM を用いた計測手法の例

パルス電子線を応用した代表的な計測手法は、図 5-1. (a)に示すポンプ-プローブ法を用いた時間分解計測である[1]。光などのポンプ信号を試料に入力して励起状態を作り、プローブ電子線を照射して信号を計測する。この手法によりポンプ信号とプローブ電子線との時間差に応じた励起状態を計測できるため、検出器の応答速度よりも高速な現象をパルス幅と同程度の時間分解能で計測できる。光ポンプ-電子プローブ法を適用した SEM (SUEM : Scanning ultrafast electron microscope) を用いた先行研究では、Si[3-5]、GaAs[6]、CdSe[7]

などの半導体基板の表面で光照射に伴い伝導帯に励起された少数キャリアに起因する SE 信号のコントラスト変化が、時間分解能 \sim ps、空間分解能数 μm 程度で計測されている。図 5-2. (a)(b)に、n 型 Si と p 型 Si の少数キャリア寿命のドーピング濃度依存性を示す。実際の半導体デバイスで利用されるドーピング濃度 $10^{18}\sim 10^{20}\text{ cm}^{-3}$ の Si の少数キャリア寿命は $1\text{ ns}\sim 1\text{ }\mu\text{s}$ となる[8, 9]。間接遷移型の Si と比べて、直接遷移型の GaAs や GaN の場合は同じドーピング濃度に対する少数キャリア寿命がさらに短くなる[9]。上記のような半導体デバイスに対し、パルス幅がナノ秒程度のパルス電子線を用いることで、キャリア寿命に基づく表面の欠陥計測などに利用できると期待される。

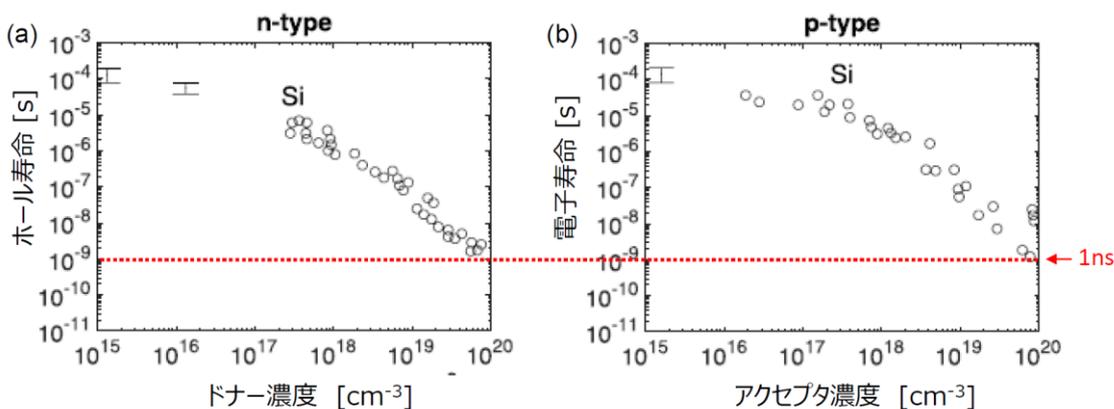


図 5-2. Si の少数キャリア寿命の不純物濃度依存性、(a)n 型 Si、(b)p 型 Si [9]

別の応用として、図 5-1. (b)に示す装置構成により、パルス電子線を照射して発生する電磁波（カソードルミネッセンス）をオシロスコープやストリークカメラなどの波形測定器を用いて周期的な信号波形の時間変化を計測する手法がある。この手法を用いることで、パルス幅と同程度の時間分解能で半導体や蛍光体の発光特性を評価できる。SEM に搭載される ET 型検出器に使われる P-47 をはじめとする発光量の大きいシンチレータの典型的な減衰時間はナノ秒 \sim マイクロ秒のものが多い[10]。このため、ナノ秒のパルス幅の電子線を用いることで発光特性を評価できる。より高速な発光特性はピコ秒パルス幅の電子線とストリークカメラを用いることで計測可能となる。文献[11]では、試料より放出された電磁波を分光器で波長分解し、ZnO や GaN の CL スペクトルを 10 ps の時間分解能で計測した結果が報告されている。

さらに別の応用として、図 5-1. (c)に示す構成で半導体デバイス試料に間欠的にパルス電子線を照射して、試料表面に蓄積・緩和する表面電荷に依存する電位コントラストを制御する手法がある。パルス幅 100 ns 程度の電子線を用いてデバイス内部の埋没構造を可視化した報告[12, 13]があるほか、パルス電子線の周波数を変えることでデバイス特性を可視化した報告[14]などがある。

図 5-1. (a)(b)に示す時間分解計測手法を SEM のような走査型マッピング計測に適用する場合、各ピクセルについてポンプ光による試料の励起とプローブ電子線による計測を実施して 1 枚の像を取得するため、ポンプ光やプローブ電子線を照射した後に、ある一定の時間間隔を置いて試料が元の状態に戻ることを前提となる。このため、SEM の電子線をパルス化した場合のアプリケーションは、基本的には可逆的な励起過程に限定される。この意味で、同じ計測手法を、投影像を取得する TEM や PEEM に適用して、不可逆過程をシングルショット像として取得する条件とは大きく異なる点に留意されたい。

また、本研究で使用したフォトカソードは高スピン偏極度の電子線を発生できる。試料に対するスピン偏極電子線の照射エネルギーを 100 eV 以下に下げることによって、磁区コントラストを含む SEM 像が得られるものと期待される。また、パルス電子線を用いて、上記の時間分解計測の手法を適用することで、磁気デバイスの時間分解スピン計測が可能となる。

本研究では、パルス幅がナノ秒程度のパルス電子線を用いて、駆動周波数 1 GHz 程度の半導体デバイスや磁気スイッチングデバイス、蛍光体材料の表面の時間分解計測をターゲットとして、パルス電子線の輝度を評価する。特に、低照射エネルギーで照射電流の大きい電子線を短パルス化すると、パルス電子線内部での電子間のクーロン反発に伴う輝度低下が課題となる。これを鑑み、本研究では照射エネルギー 3 keV のパルス電子線について、パルス条件を変えた時の照射電流を変えて、空間電荷効果の悪影響について検討する。

本研究ではパルス化された物理量 A の時間平均値 \bar{A} とピーク値 \hat{A} は区別して表記するものとする (図 5-3)。物理量 A として、励起光強度 (P)、エミッション電流 (I_E)、プローブ電流 (I_P)、換算輝度 (β_V) などが該当する。

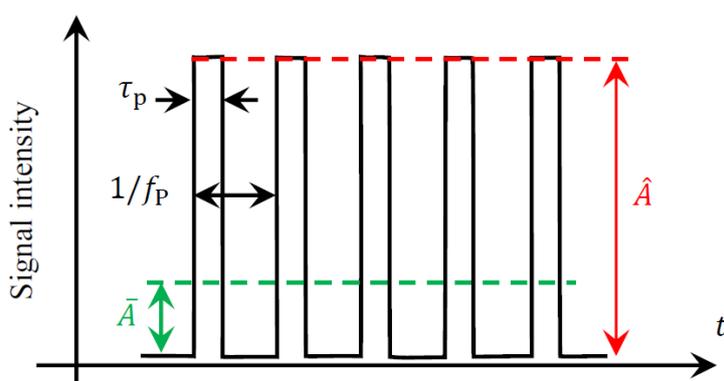


図 5-3. 物理量 A の時間平均値 \bar{A} とパルスピーク値 \hat{A} の模式図

5.2 評価系の構成

光励起電子源はフォトカソードに励起光を照射し放出される電子を利用するため、励起光源をパルス化することにより電子線をパルス化できる。光励起パルス電子銃の特性評価系の構成概要図を図 5-4 に示す。測定時の利便性向上のため、励起光学系の最上部に光ファイバのコネクタ部品を固定し、光ファイバを差換えることで別の光源を接続できるように励起光学系の構成部品を変更した。本研究の輝度測定は、図 5-4 に示すように、励起光は高輝度 NEA フォトカソードの活性層に集光された条件で実施した。なお、パルス電子線のプローブ電流の測定は、差動排気絞りでパルス電子線を角度制限する必要があるため、照射エネルギー 3 keV にて測定した。

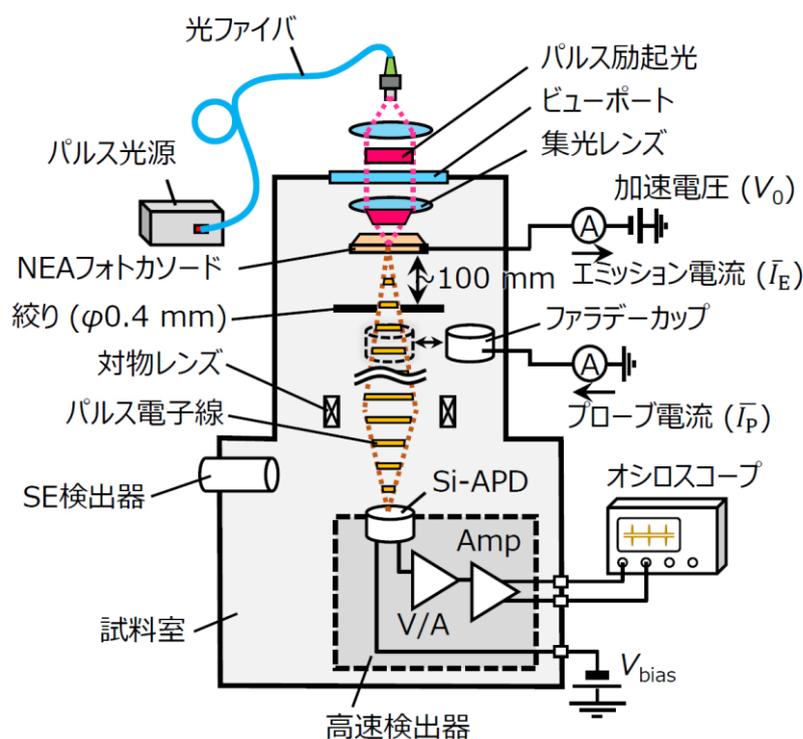


図 5-4. 開発したパルス電子銃の評価系の構成概要図

フォトカソード付近の電極構成の概略図を図 5-5 に示す。連続電子線を用いた検討ではカソード-アノード間のギャップ長 4 mm の電極構成としていたが、パルス電子銃の検討への移行に伴い、カソード-アノード間の電界強度を大きくするためにギャップ長 2 mm の電極構成に変更した。

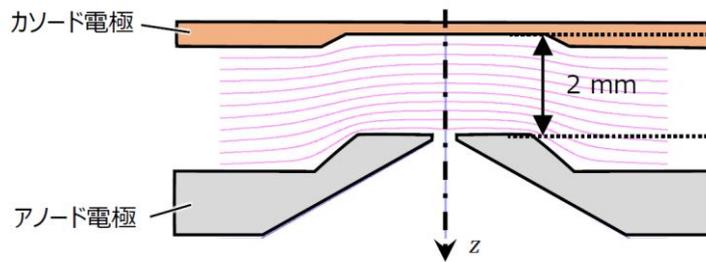


図 5-5. 開発したパルス電子銃の評価系の構成概要図

本研究で励起光源として用いた連続光源とパルス光源の仕様を表 5-1 にまとめる。パルス電子線を生成するためのフォトカソードの励起光源として、最短パルス幅が 3 ns のパルス (PW) 光源を使用した。また、時間平均輝度や量子効率を比較するために連続 (CW) 光源も使用した。PW 光源と CW 光源はいずれも光ファイバ出力のもので、高出力のレーザダイオードモジュール (Lumics 製 LU0760M200) を使用した光源を用いた。このため、どちらか一方の光源を接続して励起光学系の光路調整を実施し、光源の光ファイバコネクタを差替えることで CW 電子線と PW 電子線の比較を行った。

表 5-1. 本研究で使用したレーザ光源の仕様

光源	連続光 (CW)	パルス光 (PW)
波長 (λ)	760 nm	760 nm
パルス幅 (τ_p)	—	3 ns-1.5 μ s
パルス周波数 (f_p)	—	≤ 33 MHz
Duty比 ($\tau_p f_p$)	100 %	≤ 10 %
時間平均強度 (\bar{P})	≤ 200 mW	≤ 20 mW
ピーク強度 (\hat{P})	—	≤ 250 mW

パルス励起光のパルス幅やパルス周波数を変えると、フォトカソード内部の励起条件が時間的に離散化されるため、電子線の放出量に変化するものと期待される。このため、パルス幅やパルス周波数を別々に広範囲に変更できるパルス光源を用いた。パルス光源は株式会社トリマティス社 (Torimatiz) で開発された Flex-Pulsar II (型式 TMZ3111) を用いた。20 年前に実施された浜ホト製 NEA フォトカソードを用いたパルス電子線の輝度評価で最大輝度が Duty 比数%のパルス条件で得られた結果を考慮し、最大 Duty 比 10 %、パルス幅 $\tau_p = 3 \sim 1500$ ns、パルス周波数 $f_p = 5$ kHz ~ 33 MHz で可変である。パルス幅とパルス周波数の設定範囲を図 5-6 に示す。

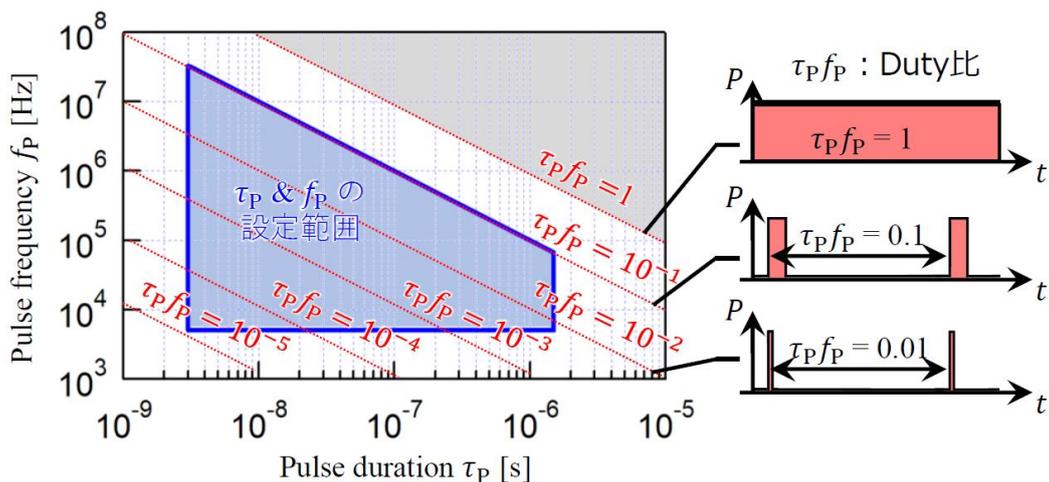


図 5-6. PW 光源で設定可能なパルス幅とパルス周波数の範囲

パルス光源から出力されたパルス波形を O/E コンバータ（Graviton 製 SPD-3）を用いて電気信号に変換し、デジタルオシロスコープで測定した結果を図 5-7 に示す。パルス周波数は $f_p = 1$ MHz に固定し、パルス幅 $\tau_p = 3 \sim 100$ ns について測定した。各パルス条件で概ね矩形に近い出力パルス波形となっていることを確認した。

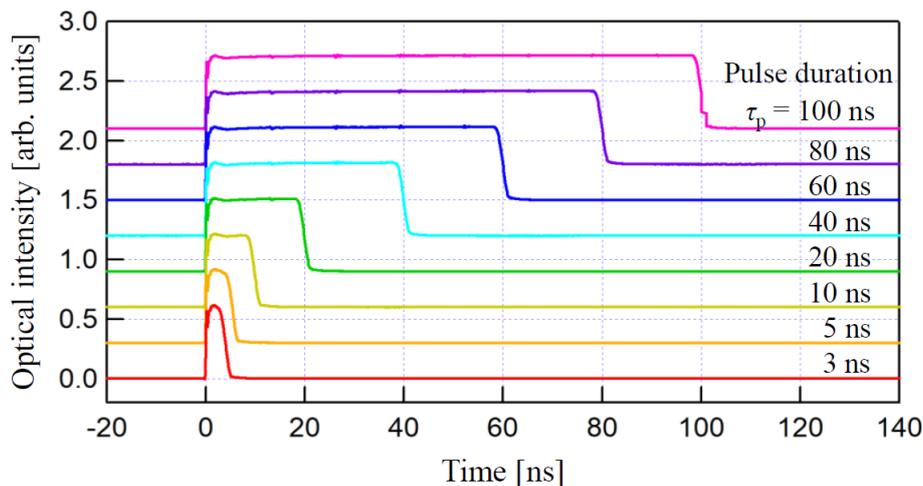


図 5-7. Flex-Pulsar II（型式 TMZ3111）より出力されたパルス光のパルス波形
パルス幅 3-100 ns、パルス周波数 1 MHz（パルス間隔 1 μ s）

開発したパルス電子銃の輝度を評価するために、電子銃室に搭載したファラデーカップを用いて、NEA フォトカソード直下 100 mm の位置に設置した差動排気絞りを通過したパルス電子線の電流（以下、プローブ電流と表記）を測定した。パルス電子線の輝度は式(2-25)を用いて計算できる。本研究では、図 5-3 に基づき、換算輝度の時間平均値とピーク値を評価した。

5.3 電子線パルス波形

ピーク輝度を正確に評価するため、電子線のパルス波形をアバランシェフォトダイオード (APD) と高速アンプで構成された高速検出器を用いて測定した。図 5-4 に示すように高速検出器を SEM 試料台に載せ、パルス電子線を APD の感受面に照射して電子線パルス波形を測定した。高速検出器の外観写真と APD の SEM 像を図 5-8 に示す。電子線を感受面に直接照射する必要があるため、APD はウィンドウレスのものを用いた。APD で高い信号増倍率を得るために、APD には逆バイアス (V_{bias}) を印加した。なお、APD の感受面の表面部には不感層があることを考慮し、電子線パルス波形の測定ではパルス電子線を APD の有感層まで到達させるために照射エネルギー 6 keV に設定した。高速アンプは電流-電圧変換器と差動出力の増幅器で構成されたものを用いた。外部からの電気ノイズを遮断するため、回路基板全体を接地電位の金属シールドで覆った状態でパルス波形を計測した。

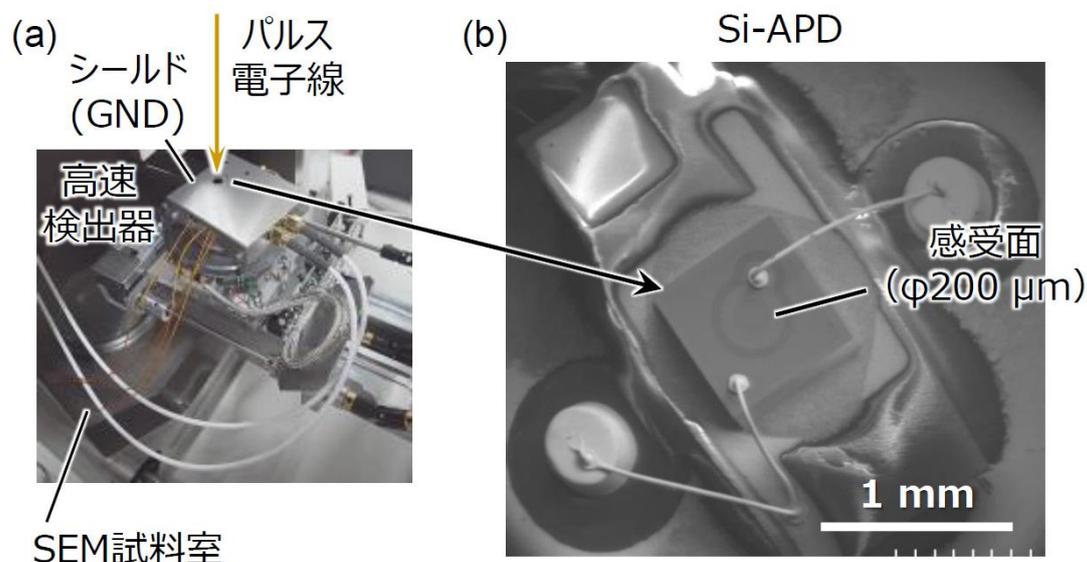


図 5-8. (a) SEM 試料台に載せた高速検出器、(b) 電子検出部 (APD) の SEM 像

パルス光源のパルス周波数を $f_p = 1 \text{ MHz}$ (パルス間隔 $1 \mu\text{s}$) に固定し、パルス幅 3~100 ns の電子線パルス波形の測定結果を図 5-9 に示す。各パルス条件について、観測されたパルス波形はパルス光と概ね同じ矩形パルス波形となることを確認した。各パルスの立ち上りのオーバーシュート、立ち下りのアンダーシュート、およびリングングは高速アンプの回路由来のものと考えられる。測定したパルス波形には、APD のアバランシェ増倍ノイズも重畳している。

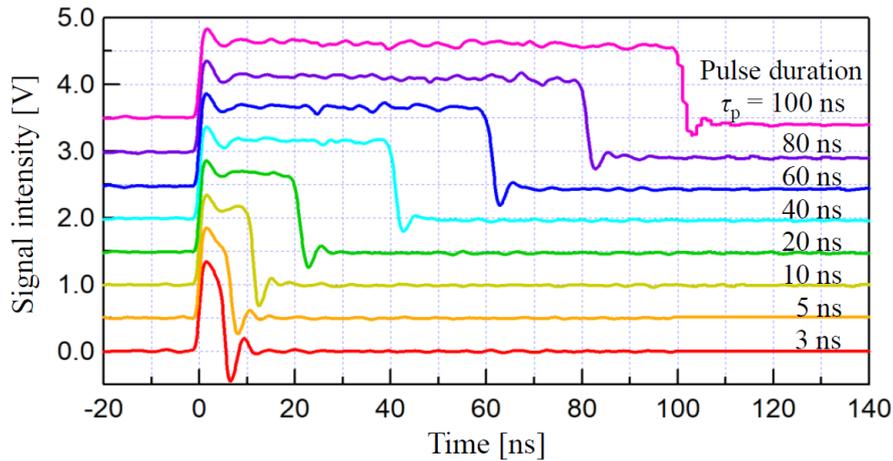


図 5-9. 開発したパルス電子銃の電子線パルス波形の測定結果
パルス幅 3-100 ns、パルス周波数 1 MHz (パルス間隔 1 μ s)

フォトカソードに照射するパルス励起光のパルス幅を変えて電子線パルス波形を測定し、観測されたパルス電子線のパルス幅の測定結果を図 5-10 に示す。横軸はパルス幅の設定値 t_{set} (励起光のパルス幅)、縦軸はパルス幅の測定値 t_{meas} である。少なくとも、パルス幅 > 5 ns については励起光と同じパルス幅が得られることを確認できた。パルス幅 \leq 約 5 ns では入力パルス幅よりも出力パルス幅がやや大きく観測されているが、これはリングングの影響とオシロスコープで計測できる時間分解能の制限のためであり、電子線のパルス波形は励起光と同様の矩形パルス波形となっているものと考えられる。電子線のパルス幅が励起光と同じであると仮定して測定結果を $t_{\text{meas}} = \sqrt{t_{\text{set}}^2 + \sigma_{\text{det}}^2}$ でフィッティングすることで回路系の測定誤差 σ_{det} を見積もったところ、 $\sigma_{\text{det}} = 3.6$ ns が得られた。

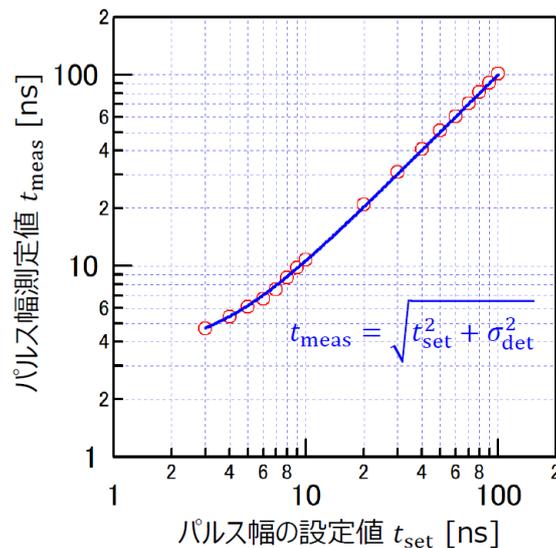


図 5-10. 励起光パルス幅に対する電子線パルス幅の測定結果

パルス電子線が励起光と同様の矩形波形と見なせる場合は、ピークプローブ電流 \hat{I}_p はプローブ電流の時間平均値 \bar{I}_p を用いて以下の式で計算できる。

$$\hat{I}_p = \bar{I}_p / (\tau_p f_p) \quad (5-1)$$

この式で、 τ_p はパルス幅、 f_p はパルス周波数、分母の $\tau_p f_p$ は Duty 比を表す。

5.4 パルス電子線の輝度評価結果

フォトカソードの励起光の最適なパルス照射条件を探索するために、フォトカソードに入射する光子数の時間平均値 ($\bar{P} = 1.2 \text{ mW}$) を固定してプローブ電流を測定した。プローブ電流ピーク値の励起光ピーク強度に対する依存性を図 5-11. (a)(b)に示す。図 5-11. (a)はパルス周波数を 1 MHz に固定し、図 5-11. (b)はパルス幅を 10 ns に固定した時の測定結果である。いずれの測定でも励起光のピーク強度の増大に伴いプローブ電流のピーク値が増大する。しかし、ピーク強度の増大に伴いピークプローブ電流の傾きが小さくなることがわかった。プローブ電流のピーク値が最大となる条件は、仮想光源径を連続電子線の時と同じ $r_0 = 0.61 \mu\text{m}$ とした場合のピーク輝度 $2.4 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ に対応する。

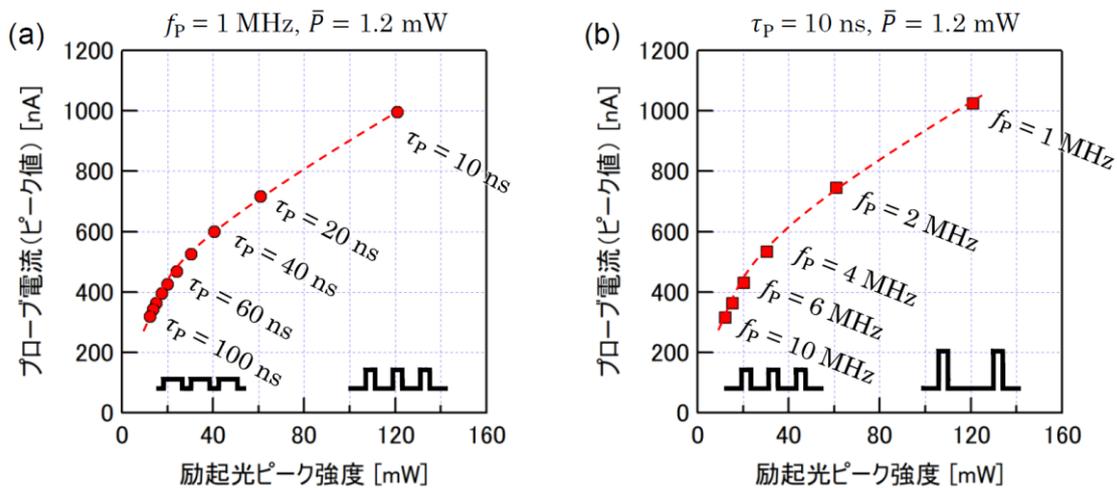


図 5-11. プローブ電流のピーク値の励起光ピーク強度依存性
(a)パルス周波数一定 (1 MHz)、(b)パルス幅一定 (10 ns)

図 5-11 の測定結果を、プローブ電流の時間平均値についてプロットした結果を図 5-12 に示す。電子線 1 パルスを発生させるために照射する光子数を固定しているにもかかわらず、励起光強度のピークの増大に伴い、プローブ電流の時間平均値は低下することがわかった。

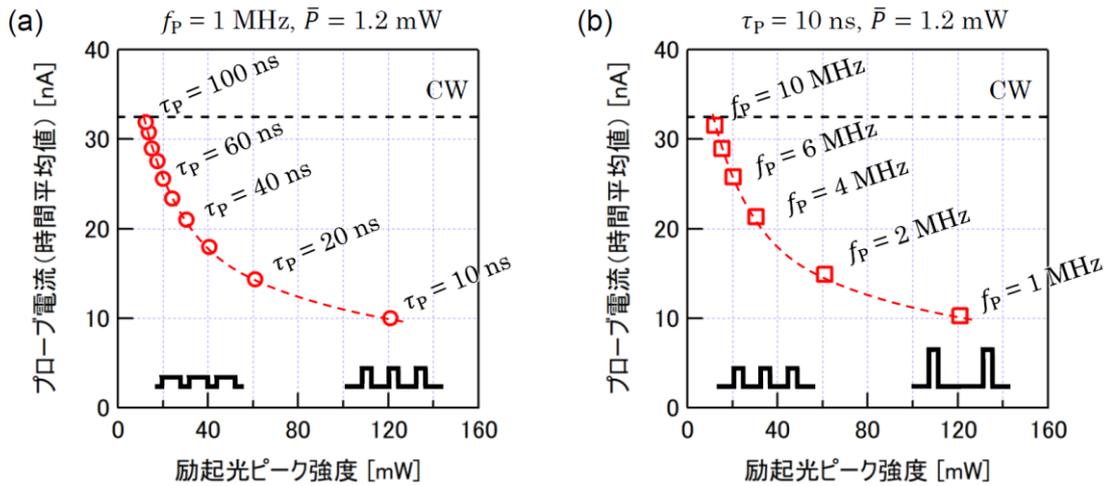


図 5-12. プローブ電流の時間平均値の励起光ピーク強度依存性
(a)パルス周波数一定 (1 MHz) 、(b)パルス幅一定 (10 ns)

励起光のピーク強度の増大に伴い量子効率が低下した要因を探索するため、以下の式(5-2)に従い外部量子効率 η_{ext} を計算し、励起光強度のピーク値に対しプロットした結果を図 5-13 に示す。

$$\eta_{\text{ext}} = \frac{hc \bar{I}_E}{e\lambda \bar{P}} \quad (5-2)$$

この式で \bar{I}_E はフォトカソードから放出される全電子に対応するエミッション電流の時間平均値、 \bar{P} はフォトカソードに照射される励起光強度の時間平均値、 h ($= 6.6 \times 10^{-34}$ Js) はプランク定数、 c ($= 3.0 \times 10^8$ m/s) は光速である。図 5-13 に、外部量子効率の励起光ピーク強度依存性を示す。パルス周波数を一定にした場合も、パルス幅を一定にした場合も、励起光ピーク強度の増大に伴い外部量子効率が低下することがわかった。

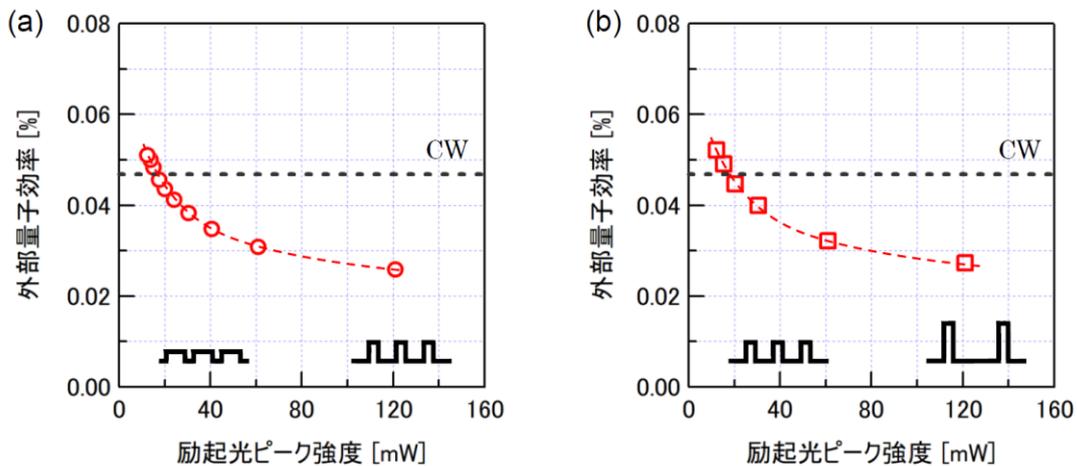


図 5-13. 外部量子効率の励起光ピーク強度依存性
(a)パルス周波数一定 (1 MHz) 、(b)パルス幅一定 (10 ns)

5.5 励起光デフォーカス時の挙動

電流密度を変えた時の影響を見るために、励起光のデフォーカス量を変えてピークエミッション電流と外部量子効率を測定した結果をそれぞれ図 5-14. (a)(b)に示す。照射エネルギー3 keV、励起光のパルス幅 10 ns、パルス周波数 1 MHz に固定し、ピーク強度は 1.1 mW、11 mW、110 mW について測定した。

各ピーク強度について、集光条件に近いデフォーカス量ではエミッション電流の顕著な低下が見られた (図 5-14. (a))。また、このエミッション電流の低下量は、ピーク強度の増大に伴い増大することがわかった。デフォーカス量に対する外部量子効率の計算結果を見ると、集光条件に近いデフォーカス量では、励起光のピーク強度の増大に伴い外部量子効率が低下しており、図 5-13. (a)(b)に示す結果と同様の傾向となる。また、ピーク強度の増大に伴い、デフォーカス時と比べて外部量子効率が低下するデフォーカス範囲が広がることがわかった。

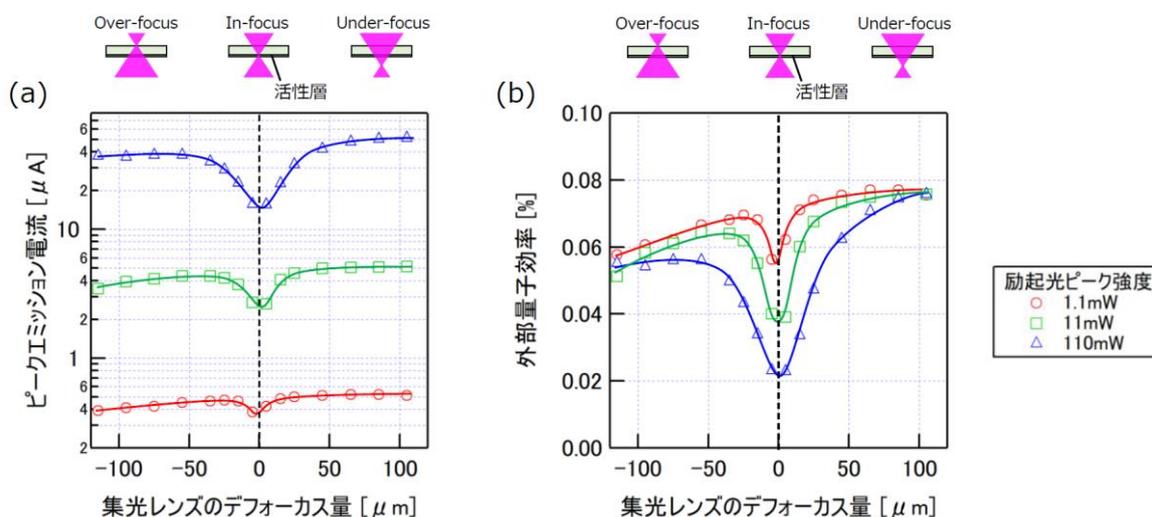


図 5-14. (a) エミッション電流のピーク値と (b) 量子効率の励起光デフォーカス量依存性
パルス幅 10 ns、パルス周波数 1 MHz

外部量子効率の低下が生じる電流密度範囲を計算するために、励起光のデフォーカス量に対して、フォトカソード表面の電流密度を計算した結果を図 5-15 に示す。この計算では、デフォーカス量を活性層上の励起光の照射径 ($1/e^2$ 幅) に変換し、その FWHM の領域から電子が放出されているものとした。

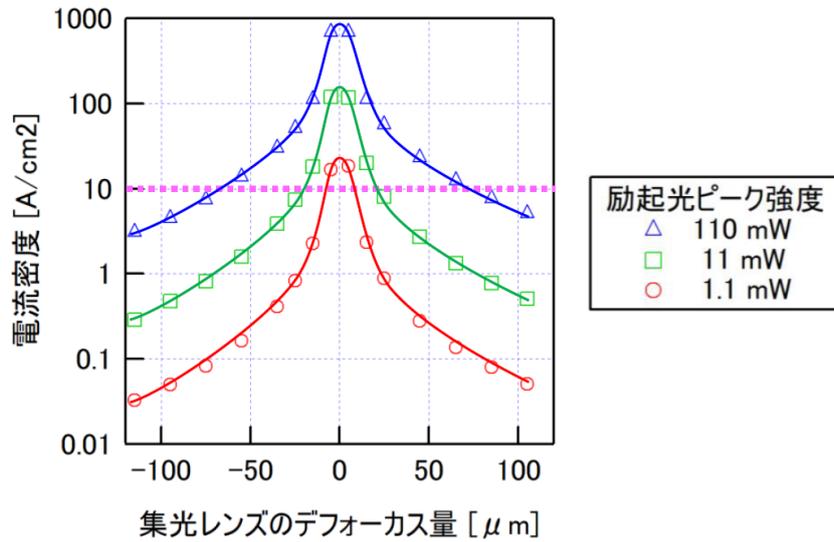


図 5-15. 電流密度の励起光デフォーカス量依存性
パルス幅 10 ns、パルス周波数 1 MHz

図 5-15 の計算結果と図 5-14. (b) との比較から、電流密度が約 10 A/cm² 以上となるデフォーカス条件で外部量子効率が顕著に低下することがわかった。

5.6 考察

図 5-13、および図 5-14 で励起光ピーク強度の増大に伴い外部量子効率が低下した要因として、フォトカソードの内部要因と外部要因の可能性が考えられる。それぞれについて検討した。

測定条件について、フォトカソード内で伝導帯に励起される電子数に基づき、放出される電子数を見積もる。まず、p 型 GaAs の伝導帯に励起される電子数 N_{ex} の増減は以下のレート方程式で計算できる[15]。

$$\frac{dN_{\text{ex}}}{dt} = \eta_{\text{int}} \frac{P\lambda}{hc} - \frac{N_{\text{ex}}}{\tau_{\text{tot}}} \quad (5-3)$$

P は励起光強度、 λ は励起波長 ($\lambda = 760 \text{ nm}$)、 η_{int} はフォトカソードの内部量子効率、 τ_{tot} は電子放出や再結合による電子の寿命である。図 5-16 に示すように、フォトカソードからの電子放出、バルク内での再結合、フォトカソード表面での再結合に伴う電子数の変化を考慮すると、 τ_{tot} は以下のように表現できる。

$$\frac{N_{\text{ex}}}{\tau_{\text{tot}}} = \frac{TN_{\text{ex}}}{\langle\tau_0\rangle} + \frac{N_{\text{ex}}}{\tau_1} + \frac{(1-T)N_{\text{ex}}}{\tau_2} \quad (5-4)$$

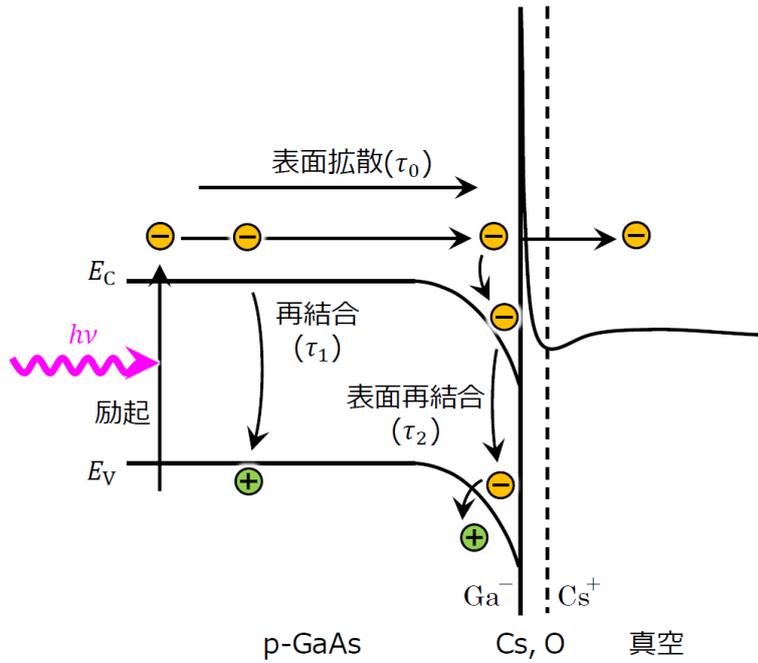


図 5-16. 励起光照射時のフォトカソード内の電子数の増減の概略図

T はフォトカソード表面に拡散した励起電子の真空領域への脱出効率 (~ 0.01)、 $\langle \tau_0 \rangle$ は 100 nm 厚の活性層の平均拡散時間 (\sim 数 ps)、 τ_1 はバルクの再結合時間 (~ 100 ps)、 τ_2 は表面の再結合時間である。いま、 $\tau_2 \sim 1$ ps として式(5-4)を計算すると、 $\tau_{\text{tot}} \sim 1$ ps となる [16]。なお、ここで表面電荷効果によるトラップ電荷に起因するポテンシャル変化は考慮していない。

パルス幅 > 1 ns は伝導帯に励起された電子の寿命よりも大きいので、パルス光を照射した時の伝導帯の電子数は定常状態と見なすことができる。内部量子効率 $\eta_{\text{int}} = 0.1$ として励起光強度 10 mW と 100 mW に対する定常状態 ($dN/dt = 0$) に伝導帯に励起される電子数 $N_{\text{ex}} = \eta_{\text{int}} P \lambda \tau_{\text{tot}} / hc$ を計算すると、それぞれ $N_{\text{ex}} = 4 \times 10^3$ 個、 $N_{\text{ex}} = 4 \times 10^4$ 個となる。

次に、状態密度から伝導帯に励起できる電子数 N_{ds} を計算する。光励起に伴い伝導帯に励起された電子のエネルギーが $E_C \sim E_C + k_B T$ の範囲にあると考えた場合、単位体積あたりの電子の状態数は以下で計算できる [15]。

$$n_{\text{ds}} = \int_{E_C}^{E_C + k_B T} \frac{4\pi}{h^3} (2m_r^*)^{3/2} \sqrt{E - E_C} dE = \frac{8\pi}{3} \left(\frac{2m_r^* k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \quad (5-5)$$

式(5-5)で、 h はプランク定数 ($h = 6.6 \times 10^{-34}$ J s)、 k_B はボルツマン定数 ($k_B = 1.38 \times 10^{-23}$ J/K)、 m_r^* は GaAs の換算有効質量 ($m_r^* = 0.058 \times 9.1 \times 10^{-31}$ kg) である。活性層の 100 nm $\times \phi 2 \mu\text{m}$ の円筒領域で伝導帯に励起できる電子の数は、室温 ($T = 300$ K) で $N_{\text{ds}} \sim 8 \times 10^4$ 個

($\langle N_{ex} \rangle$) と見積もられる。このため、伝導帯に励起できる電子数の最大値は励起光強度によらず $N_{ds} \sim 8 \times 10^4$ 個となる。パルス幅 τ_p ($\gg \tau_{tot}$) のパルス光を照射すると、式(5-4)から、フォトカソード内から真空領域に放出される電流数は以下の式で計算できる。

$$N_E = T \frac{N_{ds}}{\langle \tau_0 \rangle} \times \tau_p \quad (5-6)$$

この時のエミッション電流のピーク値は $I_E = eN_E/\tau_p = TeN_{ds}/\langle \tau_0 \rangle$ から最大で約 130 μA まで放出できる。しかし、実際のエミッション電流は励起光強度のピーク値に依存し、10 mW で約 5 μA 、100 mW で約 20 μA となっており、計算上の最大エミッション電流よりも充分に小さい。このため、フォトカソード内部の問題で励起される電子数が制限されているとは考えにくい。

次に、真空領域の空間電荷効果による制限について検討した。フォトカソード活性層に励起光が集光して照射された $\phi 2 \mu\text{m}$ の領域から真空領域に放出された電子の電流密度が高いために、電子間のクーロン反発に起因する電流密度制限の状態となっている可能性が考えられる。まず、励起光のピーク強度の増大に伴い、量子効率が低下する要因を調べるために、Child-Langmuir の式を用いて真空領域の空間電荷効果の影響を検討した。カソードから放出できる電流密度の上限値 J_m は以下の式(5-7)で表される [17]。

$$J_m = \frac{4\epsilon_0}{9} \sqrt{\frac{2e V_0^{3/2}}{m_e d^2}} \quad (5-7)$$

この式で ϵ_0 は真空の誘電率、 d はカソード表面からの距離、 V_0 はカソード表面から光軸に沿って距離 d 離れた位置の電位を表す。この式では、横方向に広がらない電子線に対して、空間的な電流密度の上限値を与える。一方、図 4-5. (a) に示すように、フォトカソードから放出される電子線はアノード通過するまでの間に横方向に広がるため、式 (5-7) をそのまま適用することができない。そこで、フォトカソード近傍から電子線の進行方向の区間を区切り、 d を区間の長さ、 V_0 をその区間の電位差として電流密度の上限値を計算した。光軸に沿った軸上電位と、それに対応する電流密度の上限値を図 5-17 に示す。

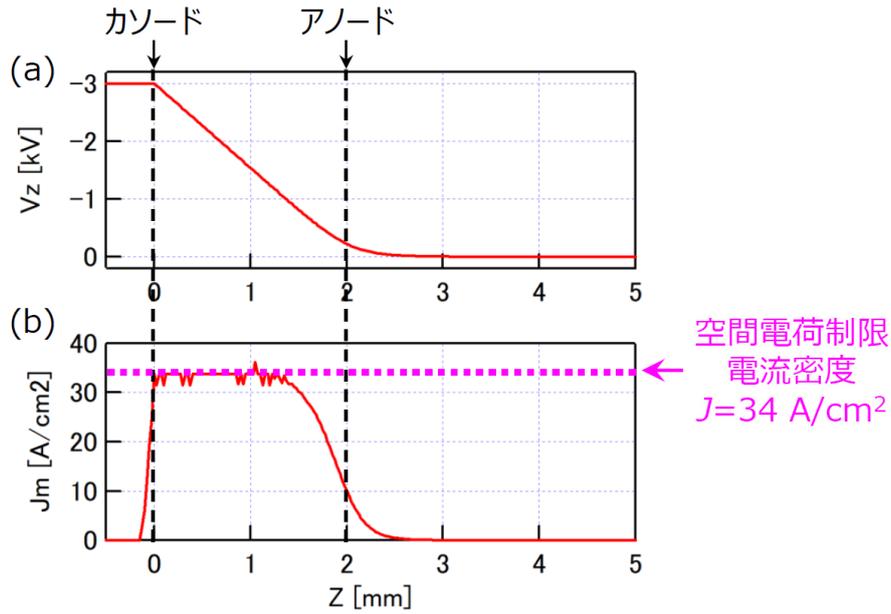


図 5-17. (a) 軸上電位分布、(b) 空間電荷制限電流密度

フォトカソード近傍で計算した空間電荷制限電流密度は 34 A/cm^2 となることがわかった。また、この電流密度は図 5-15 で量子効率の低下が顕著に見られた電流密度の範囲と同程度となることを確認した。

次に、図 5-11～図 5-13 に対応する条件について、エミッション電流のピーク値 (\hat{I}_E) に相当する電子線が励起光の照射領域 ($2r_0 = 2 \mu\text{m}$) から放出されているものとして、フォトカソード近傍の電流密度 ($J = \hat{I}_E / (\pi r_0^2)$) を計算した結果を図 5-18 に示す。各条件に対応する電流密度は、Child-Langmuir の式で計算される空間電荷制限電流密度 34 A/cm^2 よりも大きいことがわかった。

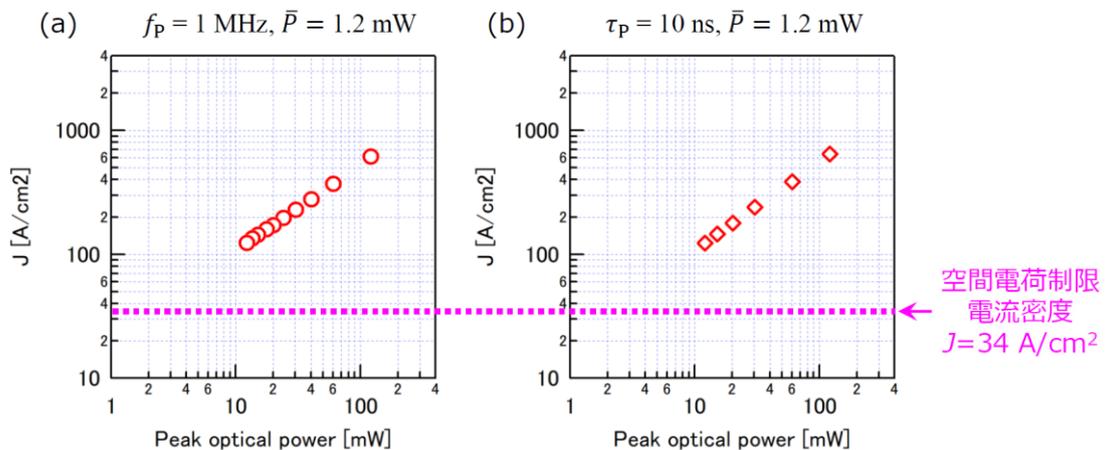


図 5-18. フォトカソード近傍の電流密度

(a) パルス周波数一定 (1 MHz)、(b) パルス幅一定 (10 ns)

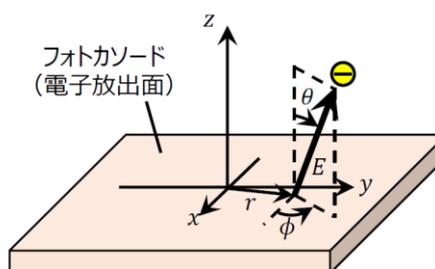
以上より、外部量子効率が低下した要因は、真空領域の空間電荷効果の影響である可能性が高い。パルス電子線における空間電荷効果の影響をより正確に評価するために、空間電荷効果を考慮した軌道シミュレーションを実施した結果を次節に示す。

5.7 空間電荷効果を考慮した軌道解析

空間電荷効果を加味したパルス電子線の軌道解析シミュレータとして、本研究では General Particle Tracer (Pulsar Physics 社製) を用いた[18, 19]。空間電荷効果の計算手法として、本研究では粒子間にはたらくクーロン相互作用を近似なく考慮する Point-To-Point 法を適用した。Point-To-Point 法は空間電荷効果の計算精度が高い一方、1 パルスに含まれる電子数 \hat{N}_E の多い条件 ($\hat{N}_E > \text{約 } 10000$ 個) では膨大な計算時間が必要となる。この問題を軽減するため、GPT では粒子数 N_{MP} を設定し、全電荷量 $\hat{Q}_E = e\hat{N}_E$ に対し電荷量 $e\hat{N}_E/N_{MP}$ 、質量 $m_e\hat{N}_E/N_{MP}$ のマクロ粒子と呼ばれる仮想的な粒子について電磁界中の軌道が計算される。これにより、電子数の大きいパルス電子線についても計算精度の劣化なく空間電荷の影響を考慮した計算が可能となる。マクロ粒子数は 6000 個/pulse に設定した。フォトカソード上の電子放出位置の初期分布は、励起光強度の $1/e^2$ 幅 ($\sim \phi 2 \mu\text{m}$) を考慮して $\phi 2 \mu\text{m}$ の一様分布とした。シミュレーション条件を表 5-2 に示す。電極構造は図 5-4 に示す構成とし、フォトカソードとアノード電極の間の電位差は 3 kV の条件で計算した。フォトカソードとアノードの間の電界計算には Poisson を用いた[20]。軌道解析はパルス幅 10 ns に固定した測定条件について実施し、1 パルスあたりの電荷量を 40 fC/pulse、80 fC/pulse、120 fC/pulse、160 fC/pulse、200 fC/pulse について計算した。

表 5-2. GPT のシミュレーション条件

カソード電圧	$V_0 = 3 \text{ kV}$	
初期分布	E	$E_0 = 0.2 \text{ eV}$
	r	一様分布 ($\phi 2 \mu\text{m}$)
	θ	$\theta_0 = 0\text{-}30 \text{ deg}$
	ϕ	$\phi_0 = 0\text{-}360 \text{ deg}$
空間電荷効果	Spacecharge3D (point-to-point method)	
パルス幅	$\tau_p = 10 \text{ ns}$	
1パルスの電荷量	40, 80, 120, 160, 200 fC/pulse	
マクロ粒子数	6000 個/pulse	



パルス電子線の平均軌道を比較した結果を図 5-19 に示す。空間電荷効果を考慮しない場合の軌道は電荷量に依存しないため、どの条件でも同じ軌道となる。ここで、平均軌道とは、各時刻のマクロ粒子の座標 (R , Z) の平均値をプロットしたものである。各グラフでは、空間電荷効果を考慮した場合と考慮しない場合の比較を示している。

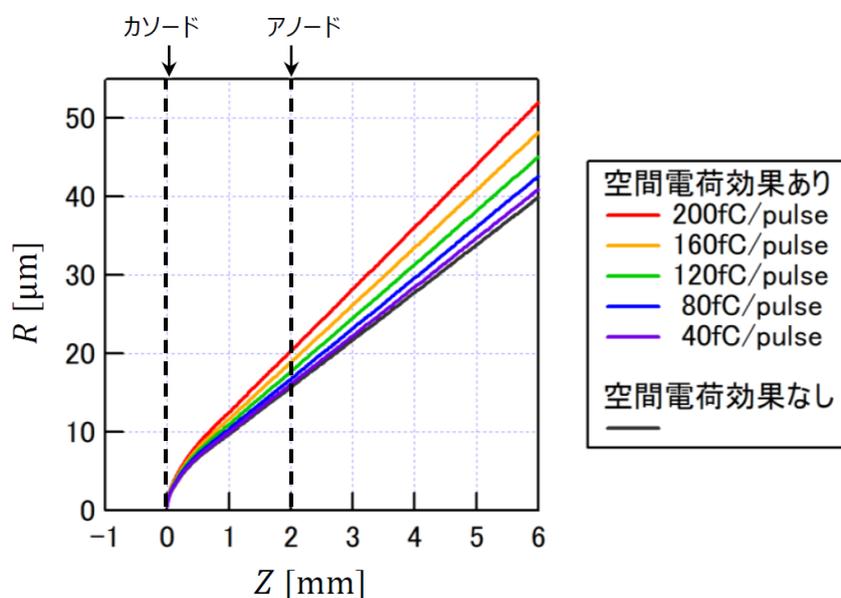


図 5-19. 空間電荷効果の有無を比較したパルス電子線の平均軌道の計算結果
電荷量 40、80、120、160、200 fC/pulse

1 パルスあたりの電荷量の増大に伴い、空間電荷効果を考慮した軌道の横方向の広がりが増大することを確認した。空間電荷効果の考慮の有無で比べると、電荷量 200 fC/pulse の条件では空間電荷効果を考慮しない場合と比べて平均軌道の離軸量が 30%程度増大している。

空間電荷効果の影響を加味してパルス電子銃の換算輝度を評価するために、軌道計算結果に基づき仮想光源径を計算した。6000 個の各マクロ粒子について、ファラデーカップの直前に設置した絞り (ϕ 0.4 mm) を通過した電子線の軌道を抽出し、アノード通過後の無電界領域の 2 点 ($z_1=50$ mm、 $z_2=100$ mm) の座標値から、カソード側に軌道を外挿して任意の投影面上 ($z = z_{PJ}$) の粒子の離軸量 r_{PJ} を計算した (図 5-20. (a))。

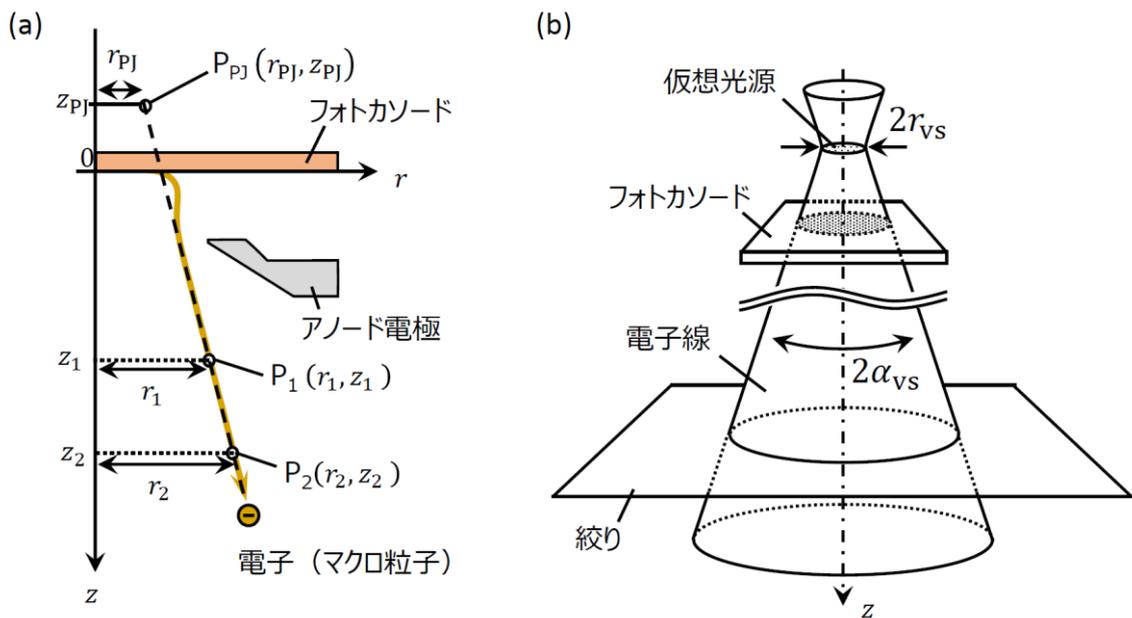


図 5-20. (a) 粒子軌道に基づく仮想光源径の計算手順の概要図、
(b) フォトカソードを用いた電子源の仮想光源位置の概略図

空間電荷効果を考慮した軌道計算結果に基づき、各条件の仮想光源径を評価した。仮想光源は電子線の包絡線の直径が最小となる位置の電子放出面に対応する (図 5-20. (b))。このため、各投影面で絞りを通過したマクロ粒子について r_{PJ} の平均値を算出し、 z_{PJ} を変えた時の r_{PJ} の最小値を仮想光源径 (r_{VS}) とした。仮想光源径の計算結果を図 5-21 に示す。

	40 fC/pulse	80 fC/pulse	120 fC/pulse	160 fC/pulse	200 fC/pulse
	$2.5 \times 10^5 \text{ e}^-/\text{pulse}$	$5.0 \times 10^5 \text{ e}^-/\text{pulse}$	$7.5 \times 10^5 \text{ e}^-/\text{pulse}$	$1.0 \times 10^6 \text{ e}^-/\text{pulse}$	$1.25 \times 10^6 \text{ e}^-/\text{pulse}$
空間電荷効果あり	$\phi 3.86 \mu\text{m}$ 	$\phi 8.15 \mu\text{m}$ 	$\phi 9.80 \mu\text{m}$ 	$\phi 9.25 \mu\text{m}$ 	$\phi 8.76 \mu\text{m}$
空間電荷効果なし	$\phi 1.70 \mu\text{m}$ 				

図 5-21. 粒子軌道に基づく仮想光源径の計算結果

仮想光源径の計算値を比べると、空間電荷効果により仮想光源径が増大することを確認した。空間電荷効果がない場合は励起光の照射スポット径と同程度の $\phi 1.7 \mu\text{m}$ となる一方、空間電荷効果を考慮した場合の仮想光源径は、40 fC/pulse で $\phi 3.9 \mu\text{m}$ 、200 fC/pulse で $\phi 8.8 \mu\text{m}$ となった。得られた仮想光源径（図 5-21）とプローブ電流の測定結果（図 5-11）から、励起光ピーク強度に対するピーク輝度を計算した結果を図 5-22 に示す。

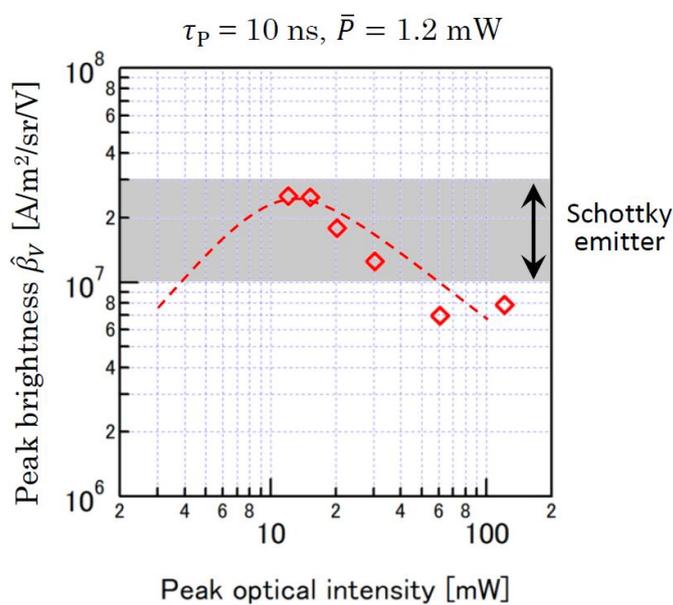


図 5-22. 空間電荷効果を考慮したピーク換算輝度のピーク強度依存性

空間電荷効果の影響による仮想光源径の増大を加味した結果、ピーク強度 $> 10 \text{ mW}$ でピーク強度の増大に対しピーク輝度が低下する結果が得られた。連続電子線の最大輝度 $1.1 \times 10^7 \text{ A/sr/m}^2/\text{V}$ が励起光強度 10 mW 付近で得られた結果であることを考慮すると、パルス電子線の輝度の最大値が $2 \times 10^7 \text{ A/sr/m}^2/\text{V}$ となった結果は妥当と言える。なお、本研究では仮想光源径の計算で表面電荷効果の影響を考慮していないが、表面電荷効果が顕在化すると励起光強度の強い中心部分では電子放出量が低下するため、電子の放出初期分布や放出角度分布が変化すると予想される。これらを加味することで、より実態に近い輝度を評価できるものとする。

以上より、カソードとアノードの 2 電極構造でエネルギー 3 keV のパルス電子線では、電子数の増大に伴い発生する空間電荷制限の影響で輝度が低下することがわかった。真空領域の空間電荷効果が生じる原因は、フォトカソードから放出された電子が十分に加速されていないフォトソード近傍の領域における電子間のクーロン相互作用に起因する。この問題は、フォトカソード近傍で速やかに電子線を加速できる条件に設定することで軽減できる。具体

的な手法として、(1)リターディング法の適用と(2) フォトカソードとアノードの間に引出し電極を追加した電極構造などが考えられる。これらは、いずれもフォトカソードの表面近傍に分布する、電子に対する加速電界を増大する手法である。従来の電極構造を図 5-23. (a)に、リターディング法を適用した場合の電極構造を図 5-23. (b)に、引出し電極構造を適用した場合の電極構造を図 5-23. (c)に各々示す。

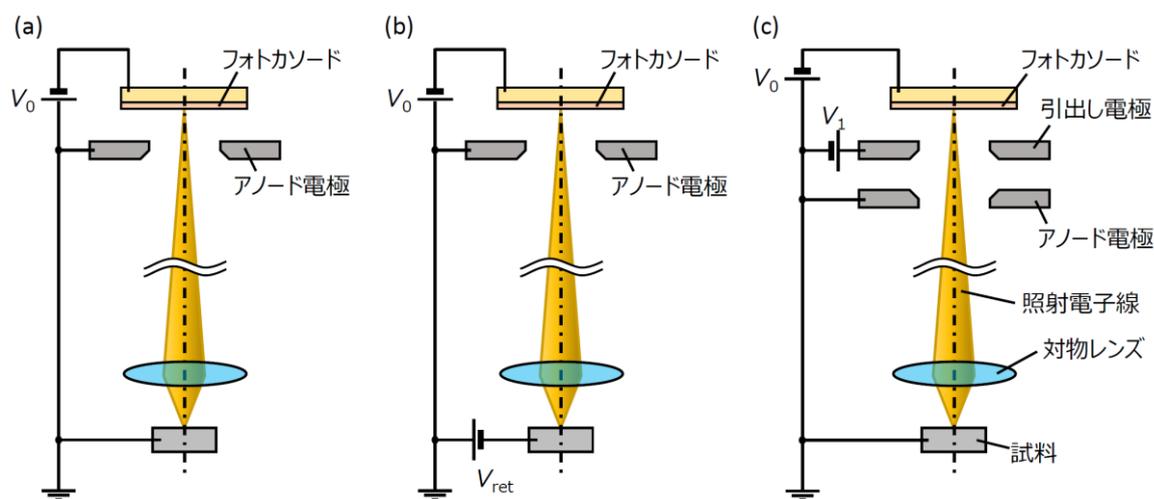


図 5-23. 空間電荷効果を考慮したピーク換算輝度のピーク強度依存性

(1)のリターディング法を適用した場合（図 5-23. (b)）は、2 章にて対物レンズの焦点距離を実効的に小さくする手法として述べた。この方法を用いた場合、フォトカソードから放出される電子線の加速条件は実質的に照射エネルギーの高い条件と同等となる。例えば、電子銃部分でエネルギー10 keV の電子放出条件に設定し、試料に-9 kV の負電圧を印加することで、試料に対する照射エネルギーは 1 keV にすることができる。(2)のフォトカソードとアノードの間に引出し電極を追加した電極構造（図 5-23. (c)）は、例えば電子銃の電極構造をカソード、引出し電極、アノードの 3 電極構造とし、フォトカソードと引出し電極の間に分布させる加速電界を、2 電極構造と比べて大きくなるように電子銃の電極を構成するものである。なお、(1)と(2)を組み合わせることで、さらに効果的に空間電荷効果の影響を低減できる。

ここで、結合状態密度に基づき、本研究のフォトカソードで得られる最大輝度を見積もる。フォトカソードのパルス幅は、励起された電子がフォトカソード表面に拡散する時間で制限され、最短パルス幅は数 ps となる[2]。式(5-5)を用いて計算した伝導帯に励起できる電子数 $N_{ds} \sim 8 \times 10^4$ 個が、空間電荷効果の影響を受けずに、パルス幅 $\tau_p \sim$ 数 ps で真空領域に放出された場合を考える。 $I_E = TeN_{ds}/\tau_p = 130 \mu A$ で、仮想光源 $2r_0 = 2 \mu m$ 、初期放出角度 $\alpha_0 = 100 \text{ mrad}$ 、初期エネルギー $eV_0 = 0.2 \text{ eV}$ の時、式(2-25)を用いて換算輝度は 6.5×10^9

A/m²/sr/V と計算され、CFE 電子源 (3×10⁸ A/m²/sr/V) を上回る高い換算輝度が得られると期待される。しかし、実際には空間電荷制限現象と表面電荷制限現象による制限を受けるため、Schottky 電子源と同程度の換算輝度 2×10⁷ A/m²/sr/V となっていると考えられる。

なお、CFE 電子源で 3×10⁸ A/m²/sr/V もの高輝度が得られる理由は、先端径を φ 100 nm に先鋭化した陰極先端部に数 V/nm の強電界が印加されるためである。フォトカソードを含む面電子源は陰極面に電界集中することが構造上難しいが、CFE 電子源のような針状電子源では陰極表面から放出された電子が速やかに加速されるため、空間電荷制限の影響を受けにくい特長がある。

5.8 パルス SEM の像分解能評価

光ポンプ-電子プローブ法を SEM に適用した場合の装置構成例、試料励起光 (パルス光) および照射電子線 (パルス電子線) の照射イメージ、および試料励起光、照射電子線、検出信号のタイミングチャートを図 5-24 に示す。

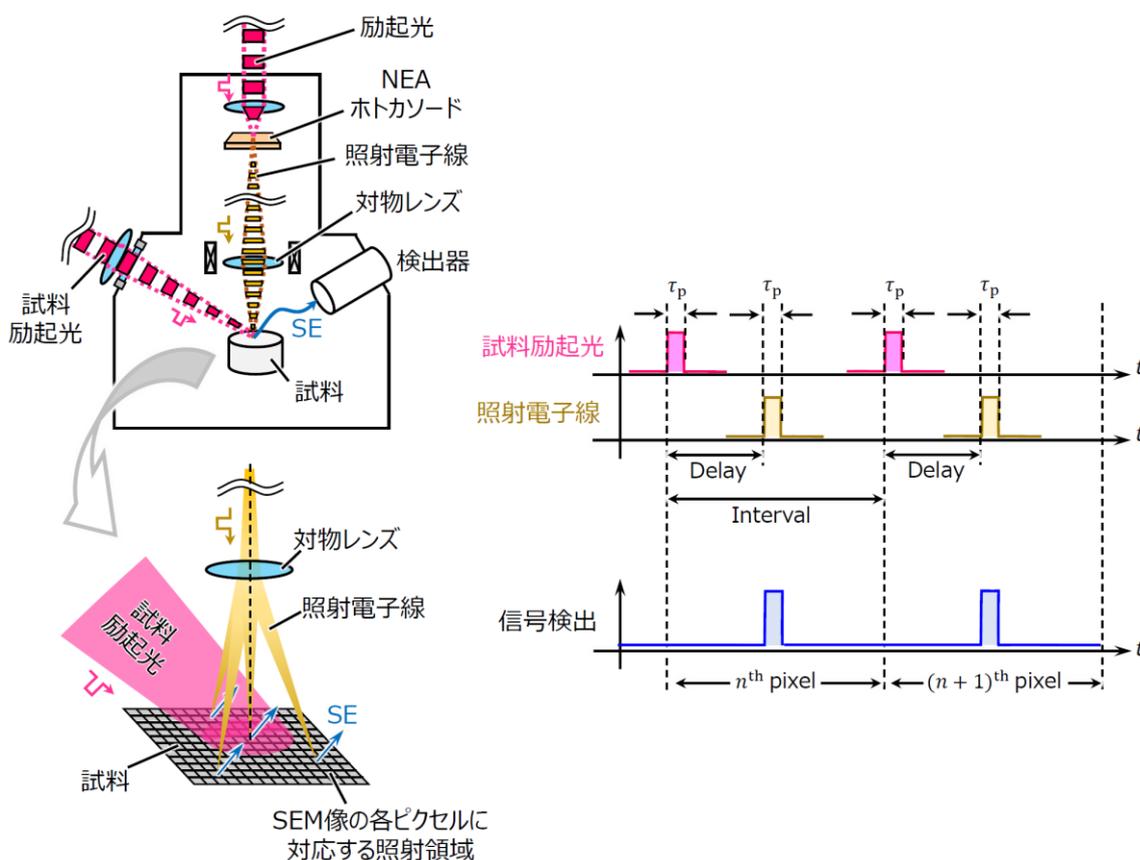


図 5-24. 時間分解計測機能を有する SEM の装置構成例 (左上)、
試料に対する励起光 (パルス光) と照射電子線 (パルス電子線) の照射イメージ (左下)
試料励起光、照射電子線、検出信号のタイミングチャート (右)

ポンプ光照射に伴う励起状態を SEM 像として観測するために、ポンプ光とプローブ電子線は同一領域に照射する必要がある。試料励起光の集光径は電子線のスポット径よりも大きくなるため、ターゲットとする領域に励起光を照射し、プローブ電子線は各ピクセルに照射して発生する信号を検出することで SEM 像を取得する。SEM では試料上に集束した電子線を試料上で走査して像を得る必要があるため、パルス化された励起光とパルス化された電子線を一定の遅延時間 (Delay) で照射して 1 枚の SEM 像を取得する。同様にして、Delay を変えて SEM 像を取得することで、異なる励起状態に対応する SEM 像を取得する。このようにして、遅延時間を変えて SEM 像を取得することで、時間分解計測が可能となる。なお、この原理に従う限りは、ポンプ光の照射に伴う試料の励起過程は可逆過程であることが前提であり、次のポンプ光を照射するまでのインターバルの間に、試料が励起状態から基底状態となっていることが必要となる。

試料内で発生した SE が試料外に放出されるまでに要する時間は、照射電子線が試料内で散乱する回数や、次の散乱までの移動距離などに依存する。試料に対し電子線が入射する時間を基準として SE 放出の典型的な所要時間は 1 fs 程度である[21]。この観点で、ps~ns の時間スケールで時間分解計測を行う場合に、SE 放出過程の時間特性は問題にならない。

製作した電子銃を搭載した SEM を用いて、照射エネルギー 3 keV でパルス電子線と連続電子線で取得した金粒子試料の SEM 像を図 5-25. (a)(b)に示す。連続電子線 (図 5-25. (a)) とパルス電子線 (図 5-25. (b)) の照射プローブ電流 (時間平均値) は~数 10 pA、撮像時間は 40 sec である。図 5-25. (b)で、パルス電子線のパルス条件はパルス幅 3 ns、パルス周波数 33 MHz (Duty 比 10%) とした。エミッション電流の測定値から算出した 1 パルスあたりの電荷量は 30 fC/pulse であり、ピーク輝度 $\sim 1 \times 10^7$ A/m²/sr/V のパルス条件で SEM 像を取得した。なお、図 5-25. (b)で、試料に照射されるパルス電子線の 1 パルスあたりの電子数は約 10 e/pulse である。

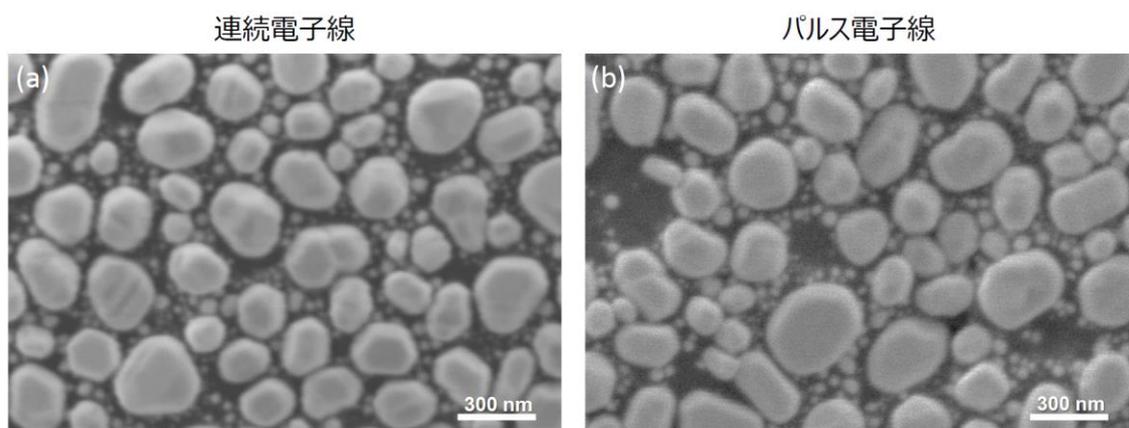


図 5-25. 光励起電子源を搭載した SEM で取得した照射エネルギー 3 keV の金粒子像
(a) 連続電子線、(b) パルス電子線 (パルス幅 3 ns)

図 5-25. (a)(b)の各 SEM 像について、連続電子線の分解能評価に用いた DR 法による像シャープネス値 ($\sqrt{2}\sigma$) を評価した結果、連続電子線 (図 5-25. (a)) で 6.0 nm、パルス電子線 (図 5-25. (b)) で 6.2 nm が得られ、概ね同等の照射性能が得られていることを確認した。なお、図 5-25. (b)では連続電子線の場合と同じ検出系を利用して SEM 像を取得している。このため、電子銃の換算輝度のピーク特性を最大限に活かすには、試料にパルス電子線が照射されたタイミングに合わせて信号検出するように、検出系を同期する方式とすることが望ましい。

得られた像シャープネス値が光源径に起因するボケ量と同程度であると仮定して電子線の輝度を評価した。 $\bar{I}_p = 10 \text{ pA}$ 、 $r_i = 3 \text{ nm}$ 、開き角 $\alpha_i = 6 \text{ mrad}$ 、照射エネルギー $eV_0 = 3 \text{ keV}$ より、換算輝度の時間平均値は $1 \times 10^6 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ が得られる。パルス励起光の Duty 比 10% を加味すると、ピーク輝度は $1 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ の条件に対応する。このため、軌道計算結果から予想される換算輝度のピーク値と概ね整合する結果が得られた。以上より、製作した光励起電子銃で生成されるパルス幅ナノ秒程度のパルス電子線を用いた SEM の低照射エネルギーの観察で、空間分解能 10 nm 程度と時間分解能数 ns を両立した計測が可能となる見通しが得られた。

ここで、得られた結果を先行研究と比較する。SEM で従来と同じ検出系を用いて光ポンプ-電子プローブ計測を行う場合、1 ピクセルの滞在時間が約 10 μs の撮像条件で十分な検出信号を得るために 1 パルスの電子数は約 10 個以上が必要とされる [9]。先行研究の光電効果を利用したパルス電子源では輝度不足のため、最適絞り径 30 μm に対し絞り径 100~500 μm に設定されている [9]。この条件では照射開き角が最適条件の約 10 倍と大きくなるため、高い空間分解能を得るのは難しい。一方、半導体試料に光照射して励起される少数キャリアに起因する SE の検出信号量の違いは小さいと報告されており、特に低輝度のパルス電子銃を用いる場合は、十分なコントラストを得るためにロックイン検出方式を適用し、1 時間程度の長い撮像時間で時間変化を可視化している [22]。長時間撮像はノイズやドリフトの悪影響を受けやすく、計測スループットの観点からも好ましくない。これに対し、本研究で使用した NEA 表面を有する半導体フォトカソードを用いた電子源は最大で $1 \times 10^7 \text{ A/m}^2/\text{sr/V}$ 程度の高い輝度を有するため、nm オーダの高い空間分解能が得られる観察条件で十分な電子数を試料に照射できる。これにより、通常の SEM 観察と同程度の高い計測スループットで ns オーダの時間分解能計測が可能となる。

また、本研究で用いた NEA 表面を有するフォトカソードを用いた電子源の特長である高輝度、単色、高スピン偏極度の特性を利用することで、磁気デバイスの表面磁気特性を 100 MHz~1 GHz の周波数帯で高い時空間分解の計測が可能となる。図 5-23. (b)に示すリターディング法を適用することで対物レンズの実効的な焦点距離を短くでき、電子源が単色であ

ることを利用することで照射エネルギー1 keV 以下で高い空間分解能が得られる。以上の手法により、高偏極度のスピン偏極電子線をプローブとして磁性体試料の磁気計測、およびその時間分解計測が可能となる。最近になって実用化が始まった MRAM などの磁気デバイス構造の計測には 10 nm 程度の空間分解能が必要である。本研究で開発した NEA 表面を有するフォトカソードを用いた電子源を搭載した SEM を用いることで、上記のような微細構造を持つデバイス試料の実動作環境での計測について、ナノメートル程度の空間分解能とナノ秒程度の時間分解能を両立できる見通しを得た。

5.9 結論

製作したフォトカソードを用いた電子源を最短パルス幅が数ナノ秒のパルス光で励起し、放出されるパルス電子線のパルス波形を測定し、励起光と同様の矩形パルス波形となっていることを確認した。この測定結果に基づき、照射エネルギー3 keV のパルス電子線について、フォトカソードの外部量子効率が最大となる条件を探索した。照射する1パルスあたりの光子数を固定して、励起光のピーク強度を変えて量子効率を評価した結果、ピーク強度の増大に伴い量子効率が低下することがわかった。この要因を解析するために空間電荷効果を考慮したパルス電子線の軌道シミュレーションを実施した。その結果、空間電荷効果の影響により、パルス電子線の軌道が横方向に広がることで輝度低下していることがわかった。軌道計算結果に基づき算出した仮想光源径に基づき換算輝度を評価した結果、換算輝度の最大値は電子数約 10^5 e/pulse の条件で 2×10^7 A/m²/sr/V となり、連続電子線の場合と同程度となることがわかった。この換算輝度を検証するためにパルス電子線を用いて SEM 像を取得し、像シャープネス値の評価結果から、上記の結果が妥当であることを確認した。

また、空間電荷効果や表面電荷効果を無視した場合、フォトカソードの価電子帯の状態密度と励起電子の拡散時間を加味した最大輝度は、最短パルス幅 1 ps で 7×10^9 A/m²/sr/V と見積もられる。しかし、実際には空間電荷効果や表面電荷効果の影響で Schottky 電子源と同程度の 2×10^7 A/m²/sr/V の輝度となる。これについて、照射エネルギー3 keV について、パルス電子線を用いて SEM 像の像シャープネス値 (DR 法) に基づき試料面で輝度を評価し、上記の結果が妥当であることを検証した。

本研究のフォトカソードを用いたパルス電子源では、照射エネルギー3 keV で最大 2×10^7 A/m²/sr/V 程度のピーク輝度が得られることを確認した。NEA 表面を持つフォトカソードより放出されるパルス電子線は、光電効果を利用するパルス電子源と比べてエネルギー幅が小さい特長を持つため、試料表面の情報が得られる低照射エネルギー域の時間分解計測で優位である。また、本研究のフォトカソードを用いた電子源を高偏極のパルス電子線として用いた場合は、100 MHz~1 GHz の周波数帯で利用される磁気デバイスの実動作環境での時

間分解スピントラッキングに対し、ナノメートル程度の空間分解能とナノ秒程度の時間分解能を両立できる見通しを得た。

第 5 章の参考文献

- [1] A. H. Zewail and J. M. Thomas, 4D Electron Microscopy: Imaging in Space and Time, Imperial College Press (2009).
- [2] 桑原 真人, スピン偏極パルス透過電子顕微鏡の開発, まてりあ 第 58 卷 第 5 号 pp.269-274 (2019 年).
- [3] E. Najafi, V. Ivanov, A. Zewail, and M. Bernardi, Super-diffusion of excited carriers in semiconductors, Nat. Commun. Vol. 8, 15177 (2017)
- [4] E. Najafi and A. Jafari, Ultrafast imaging of surface-exclusive carrier dynamics in silicon, J. Appl. Phys. 125, 185303 (2019).
- [5] J. Zhao, O. M. Bakr, and O. F. Mohammed, Ultrafast electron imaging of surface charge carrier dynamics at low voltage, Struct. Dyn. 7, 021001 (2020).
- [6] J. Cho, T. Y. Hwang, and A. H. Zewail, Visualization of carrier dynamics in p(n)-type GaAs by scanning ultrafast electron microscopy, PNAS 111 (6) 2094-2099 (2014).
- [7] J. Sun, V. A. Melnikov, J. I. Khan, and O. F. Mohammed, Real-Space Imaging of Carrier Dynamics of Materials Surfaces by Second-Generation Four-Dimensional Scanning Ultrafast Electron Microscopy, J. Phys. Chem. Lett., 6, 3884–3890 (2015).
- [8] J. Hirota, K. Yamasue, and Y. Cho, Profiling of carriers in a 3D flash memory cell with nanometer-level resolution using scanning nonlinear dielectric microscopy, Microelectron. Reliab., 114, 113774 (2020).
- [9] K. C. Collins, D. W. Chandler, A. A. Talin, J. R. Michael, Development of Scanning Ultrafast Electron Microscope Capability, SANDIA REPORT 2016-11328 (2016).
- [10] T. Bando, S. Ohdachi, and Y. Suzuki, Developments of scintillator-based soft x-ray diagnostic in LHD with CsI:Tl and P47 scintillators, Rev. Sci. Instrum. 87, 11E317 (2016).
- [11] X. Fu, et al., Exciton Drift in Semiconductors under Uniform Strain Gradients: Application to Bent ZnO Microwires, ACS Nano 2014, 8, 4, 3412–3420
- [12] E. L. Cole, Jr., C. R. Bagnell, Jr., B. Davies, A. Neacsu, W. Oxford, and S. Roy, A novel method for depth profiling and imaging of semiconductor devices using capacitive coupling voltage contrast, J. Appl. Phys. 62 (12),15, 4909-4915 (1987).
- [13] W. K. Wong, J. C. H. Phang, and J. T. L. Thong, Charging control using pulsed scanning electron microscopy, scanning, 17, 312-315 (1995).
- [14] H. Kimizuka, N. Tsuno, K. Norimatsu, A. Okita, Y. Iwabuchi, J. Tanaka, and M. Fukuda, Diagnosing Capacitance of LSI Internal Structure by Frequency Modulated

SEM, NANOTS 2019.

- [15] S. M. Sze and K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, Wiley (2006).
- [16] K. Aulenbacher, J. Schuler, D. V. Harrach, E. Reichert, J. Röthgen, A. Subashev, V. Tioukine, and Y. Yashin, Pulse response of thin III/V semiconductor photocathodes, *J. Appl. Phys.* 92, 7536 (2002)
- [17] P. Zhang, A. Valfells, L. K. Ang, J. W. Luginsland, and Y. Y. Lau, 100 years of the physics of diodes, *Appl. Phys. Rev.* 4, 011304 (2017).
- [18] <http://www.pulsar.nl/gpt/>
- [19] S.B. van der Geer, M.J. de Loos, Thesis: The General Particle Tracer code: Design, implementation and application (2001).
- [20] https://laacg.lanl.gov/laacg/services/download_sf.phtml#ps0
- [21] A. Bellissimo, G. M. Pierantozzi, A. Ruocco, G. Stefani, O. Yu. Ridzel, V. Astasauskas, W. S. M. Werner, M. Taborelli, Secondary electron generation mechanisms in carbon allotropes at low impact electron energies, *JESRA* 241 146883 (2020).
- [22] Mathijs W. H. Garming, Maarten Bolhuis, Sonia Conesa-Boj, Pieter Kruit, and Jacob P. Hoogenboom, Lock-in Ultrafast Electron Microscopy Simultaneously Visualizes Carrier Recombination and Interface-Mediated Trapping, *J. Phys. Chem. Lett.*, 11, 20, 8880 (2020).

6. 総括

6.1 本論文の結果概要

本論文では、低照射エネルギー域の SEM の観察性能を向上するための高輝度単色電子源として、名古屋大学の高輝度単色 NEA フォトカソードに着目し、これを電子源とする SEM を構築し、この SEM について性能検証を行った結果を示した。

第 1 章では、高輝度かつ狭エネルギー幅を特長とする、NEA 表面を持つ半導体フォトカソードを低照射エネルギー域の SEM を用いた計測に応用する背景や動機について解説した。また、このフォトカソードがパルス電子源やスピン偏極電子源としても利用できる特長を活かす場合、半導体デバイスや磁気デバイスの時間分解計測に展開することで、他の計測手法に対し優位性がある点を説明した。

第 2 章では、SEM の原理や SEM のビーム径に寄与する各種収差の影響について解説した。また、試料表面 10 nm 以内の情報が得られ、帯電や試料ダメージの悪影響を低減できる点で優位な低照射エネルギー域の SEM 観察で高い空間分解能を得るために、色収差の低減が重要であることを説明した。色収差を低減する手法として、単色電子源を利用することが有効であることを示した。また、一定以上の照射プローブ電流で SEM 像を得る場合、高輝度な電子源が必要となることを説明した。

第 3 章では、本研究で着目した高輝度単色 NEA フォトカソードについて詳細を解説した。NEA 表面は p 型 GaAs の表面に Cs と O₂ を吸着させることで、バンドベンディングと表面に形成される電気双極子の効果によって、真空準位がフォトカソードの伝導帯の下端のエネルギーよりも小さくなることで得られることを説明した。この状態で励起光が照射されると、価電子帯から伝導帯に励起された電子が効率よく真空領域に放出される。また、p-GaAs の有効質量が真空中の電子の静止質量の 0.065 倍と小さいために、フォトカソード表面からの電子放出角が理想条件では約 4 度以下と小さい特長を持つことを示した。これに加えて、励起光を活性層に対し集光径約 1 μm となるように、フォトカソード裏面に高 NA の集光レンズを配置する裏面照射型の構成とすることで、高輝度な電子源が得られることを示した。また、フォトカソードの励起光をパルス化することで最短パルス幅 10 ps 以下のパルス電子銃が得られる。また、フォトカソードより放出される電子線は連続電子線の場合もパルス電子線の場合もエネルギー幅が 0.2 eV 以下と小さい特長を持つことを説明した。

第 4 章では、高輝度単色 NEA フォトカソードを用いた電子銃を SEM に、搭載し、連続光で励起して発生させた連続電子線について、照射エネルギー 1 keV で像分解能を評価し、NEA フォトカソードを用いた電子源の単色性を実機検証した結果を示した。

また、フォトカソードの活性層に対し、励起光をデフォーカス照射し、取得した SEM 像のボケ量から、製作した電子源の仮想光源径を評価した。結果、仮想光源径は $\phi 1.3 \mu\text{m}$ とな

り、励起光の集光スポット径と、カソード-アノード間に形成される電界レンズ作用を加味することで、妥当な評価結果であることを確認した。また、得られた仮想光源径から、製作した電子源の輝度を評価したところ、照射エネルギー3 keV で 1.1×10^7 A/m²/sr/V を得た。

SEM 像の分解能を評価するための金粒子試料を照射エネルギー1 keV で観察し、像分解能を DR 法による像シャープネス値 (DR 値) に基づき評価した結果、エネルギー幅 0.6 eV の Schottky 電子源の場合と比べて、DR 値が約 16 %改善することがわかった。光源径の影響を加味してビーム径の計算結果と比較して検証した結果、NEA フォトカソードのエネルギー幅 < 0.2 eV を確認した。また、得られた結果を、色収差補正技術やモノクロメータを用いた色収差低減技術と比較した上で、本研究の NEA フォトカソードを用いた電子源は照射エネルギー、WD、照射プローブ電流などの幅広い計測条件に対し、色収差の悪影響を低減した計測ができる点で優位であることを示した。

第 5 章では、励起光源をパルス化して照射エネルギー3 keV でパルス電子線の輝度評価を試みた。励起光の時間平均強度を約 1 mW に固定して 1 パルスあたりの照射光子数を一定にし、フォトカソードより放出された電流を角度制限して測定し、この電流量が最大となる条件を探索した。結果、励起光のピーク強度の増大に伴い、量子効率が低下することがわかった。要因として空間電荷効果の影響を検証するために軌道シミュレーションを実施した。結果、電荷量の大きい条件では空間電荷効果の影響で仮想光源径が増大し、輝度が低下することがわかった。この影響を加味したピーク輝度の最大値は 2×10^7 A/m²/sr/V となり、連続電子線の最大輝度と同程度となることがわかった。照射エネルギー3 keV のパルス電子線を用いて取得した金粒子試料の SEM 像について、DR 値の評価結果に基づき試料面で輝度を評価し、上記の結果が妥当であることを確認した。また、照射エネルギー3 keV について、連続電子線とパルス電子線で SEM 像を取得し、パルス化に伴う像分解能の顕著な劣化はないことを確認した。なお、空間電荷効果の影響を加味しない場合に、使用したフォトカソードの状態密度や拡散時間などを加味して得られる最大輝度は 8×10^9 A/m²/sr/V と見積もられる。しかし、実際は空間電荷効果や表面電荷効果の影響を受けて Schottky 電子源と同程度の 2×10^7 A/m²/sr/V の輝度となる。以上より、SEM の電子源として本研究のフォトカソードを用いて低照射エネルギー電子線を利用することで、バルク試料の表面計測、パルス電子線による時間分解計測、高偏極電子線によるスピン計測について、10 nm 程度の高い空間分解能を得られる見通しを得た。

謝辞

本論文は執筆者が(株)日立製作所 研究開発グループに在職しながら、名古屋大学大学院工学研究科応用物理学専攻に在籍して遂行した研究の成果をまとめたものです。はじめに本論文の主査として、研究の方向性について御指導いただいた名古屋大学 未来材料・システム研究所の栗原真人准教授に感謝いたします。また、副査として御指導いただいた名古屋大学 未来材料・システム研究所の齋藤晃教授、助教として御助言をいただいた名古屋大学 未来材料・システム研究所の石田高史博士に感謝いたします。

(株)日立製作所における走査電子顕微鏡向けの高輝度単色フォトカソードの電子源の研究は、(株)日立製作所 研究開発グループの大嶋卓博士が 2000 年頃に実施した検討に端を発します。一連の研究を遂行する中で、フォトカソードを電子源として利用するための真空技術や表面処理技術に加え、電子源の評価方法について多大な御指導をいただきましたことに感謝いたします。

フォトカソードを電子源とする光励起電子銃の製作に関して、(株)日立製作所 研究開発グループの西原宏幸氏、菅谷昌和氏にお世話になりましたことを深く感謝いたします。

光励起電子銃の励起光学系に関する検討に関して、(株)日立製作所 研究開発グループの峯邑浩行博士、安齋由美子氏、井手達朗氏に御指導いただきましたことに感謝いたします。

作製したパルス電子銃のパルス波形を測定するための高速検出器に関して、(株)日立製作所 研究開発グループの大津賀一雄氏にお世話になりましたことに、深く感謝いたします。

共同研究を通じて、名古屋大学で作製されたフォトカソードを用いた電子源を研究する機会を提供いただいた、(株)日立ハイテクの揚村寿英博士、小瀬洋一氏、片根純一氏に感謝いたします。

本論文に関する電子光学の基礎については、(株)日立ハイテクの佐藤貢博士より基礎的な考え方を御教示いただいたことを感謝いたします。

光励起電子銃を搭載した装置の取扱いや操作方法に関して、(株)日立ハイテクの齋藤勉氏、高銚良浩氏、中村光宏氏、笹島正弘氏に御教示いただきましたことを感謝いたします。

走査電子顕微鏡を用いた磁性体の計測方法や磁性体試料の作製に関して、(株)日立製作所 研究開発グループの孝橋照生博士、山本浩之博士にお世話になりましたことを感謝いたします。

私自身が(株)日立製作所で企業研究者を志したのは、大学在学中に(株)日立製作所と共同研究していたことがきっかけでした。このような研究環境を提供いただいた、東京大学大学院 新領域創成科学研究科物質系専攻 伊藤耕三教授と、共同研究、および入社後に同じ所属研究部のメンバとして御指導いただいた(株)日立製作所 研究開発グループ 橋詰富博博士に感謝しております。橋詰富博博士には、東京工業大学理学院特任教授の立場から、多くの御

助言をいただきました。

最後に、日々の会社業務と並行して研究活動を推進することに理解を示し、献身的に支援してくれた妻のおかげでこの論文をまとめることができました。日々の生活を温かく見守ってくれた家族に感謝の意を表して、本論文を終わりたいと思います。

業績リスト

学術誌掲載論文（査読付き）

1. “Resolution improvement of low-voltage scanning electron microscope by bright and monochromatic electron gun using negative electron affinity photocathode”, H. Morishita, T. Ohshima, M. Kuwahara, Y. Ose, and T. Agemura, *Journal of Applied Physics* 127, 164902 (2020).
2. “Brightness evaluation of pulsed electron gun using negative electron affinity photocathode developed for time-resolved measurement using scanning electron microscope”, H. Morishita, T. Ohshima, K. Otsuga, M. Kuwahara, T. Agemura, and Y. Ose, *Ultramicroscopy*, Vol. 230, 113386 (2021).

口頭発表（国際会議）

1. “Resolution Improvement of Low-voltage Scanning Electron Microscope with Highly-bright Negative Electron Affinity Photocathode Electron Gun”, H. Morishita, T. Ohshima, M. Kuwahara, Y. Ose, and T. Agemura, *Frontiers of Electron Microscopy and Materials Science (FEMMS)*, (2019).
2. “Improvement of magnetic contrast observed by scanning electron microscope using tilting-deceleration method”, H. Morishita, T. Kohashi, H. Yamamoto, *International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2019 (ICMaSS 2019)*, (2019).

口頭発表（国内学会）

1. 「走査電子顕微鏡による磁区の新観察手法」、森下英郎、孝橋照生、山本浩之、日本物理学会 第 74 回年次大会、(2019 年)
2. 「高輝度 NEA ホトカソード電子源による SEM の低加速分解能向上」、森下英郎、大嶋卓、栞原真人、小瀬洋一、揚村寿英、日本顕微鏡学会 第 75 回学術講演会 (2019 年)
3. 「高輝度 NEA ホトカソードを用いた光励起パルス電子銃の輝度評価」、森下英郎、大嶋卓、大津賀一雄、栞原真人、小瀬洋一、揚村寿英、日本顕微鏡学会 第 76 回学術講演会 (2020 年)
4. 「高輝度単色パルス電子銃向け光励起電子源の SEM 応用」、森下英郎、電子光学設計研

究部会第7回研究会、(2020年)

5. 「高輝度NEAホトカソードを用いたパルス電子銃の照射性能評価」、森下英郎、大嶋卓、大津賀一雄、栞原真人、小瀬洋一、揚村寿英、ナノテスティングシンポジウム、(2020年)
6. 「高輝度NEAホトカソードを用いたパルス電子線における空間電荷効果の評価」、森下英郎、大嶋卓、栞原真人、揚村寿英、小瀬洋一、日本顕微鏡学会 第77回学術講演会(2021年)