

7 ビーム応用 | 一般セッション(ポスター講演): 7 ビーム応用 (ポスター)

[16p-P01-1~5] 7 ビーム応用 (ポスター)

[16p-P01-1]

30 keV励起硬X線光電子分光法における反跳効果の検討

○西原 達平¹、安野 聡¹、高木 康多¹、Seo Okkyun¹ (1.JASRI)

[16p-P01-2]

マルチ吸収端時間分解クイックXAFS計測システムの構築

○宇留賀 朋哉¹、金子 拓真¹、吉川 聡²、米里 健太郎³、河底 秀幸²、今井 康彦¹、鈴木 康介³、山添 誠司² (1.高輝度セ、2.都立大院理、3.東大院工)

[16p-P01-3]

電子線照射処理前後におけるCFRTP (CF/PPS) の衝撃値評価

○(M1C)入江 紘嵩¹、伊比井 亜弥音¹、木村 英樹¹、佐川 耕平¹、西 義武^{1,2}、内田 ヘルムート貴大¹ (1.東海大院工、2.KISTEC)

[16p-P01-4]

イオンビームプロファイルの測定によるウィーンフィルタの分離性能評価

○(B)坂本 和輝¹、野間 祐希¹、高橋 琴音¹、平田 傑之¹、松友 真哉¹、浅地 豊久² (1.新居浜高専、2.滋賀県立大)

[16p-P01-5]

超低地球軌道 (VLEO) 原子状酸素・窒素分子環境の地上対照試験

横田 久美子¹、西岡 燦太¹、中山 開智¹、上田 一輝¹、竹中 優太¹、○田川 雅人¹ (1.神戸大院)

30 keV 励起硬 X 線光電子分光法における反跳効果の検討

Investigation of the Effect of Recoil Energy

in 30 keV Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy

JASRI¹ °西原 達平¹、安野 聡¹、高木 康多¹、Seo Okkyun¹

JASRI¹ °T. Nishihara¹, S. Yasuno¹, Y. Takagi¹, O. Seo¹

E-mail: tappei_nishihara@spring8.or.jp

【背景と目的】軟 X 線を用いた軟 X 線光電子分光(XPS)と比較し、高エネルギー X 線(3-15 keV)を用いた硬 X 線光電子分光(HAXPES)は、分析深さが数十 nm になるため非破壊で埋もれた界面の電子状態分析に有用である。一方、ロジック半導体やメモリデバイスにおいては、性能向上へ向け、多積層化が進んでいる。そのため、従来の 8 keV 程度の X 線エネルギーを用いた HAXPES では検出深さが不足しつつある。このような状況を鑑み、より高エネルギー X 線(~ 30 keV)を用いた HAXPES(HE-HAXPES)の開発に着手している [1]。HE-HAXPES は試料ステージに外部電圧を印加し、光電子の運動エネルギーをアナライザーの検出可能な領域まで減速し検出する手法である(Fig. 1 参照)。X 線エネルギーと印加電圧の調整により、検出深さを数百 nm の範囲内で変化可能である。一方、光電子の運動エネルギーの増加に伴い、反跳効果を考慮する必要がある [2]。本実験では、30 keV 励起の HE-HAXPES を用いて、様々な元素のリコイルエネルギーの影響について検討を行った結果について報告する。

【実験】HE-HAXPES は、SPRING-8 BL46XU にて実施し、X 線エネルギーは 6, 8, 10, 12, 15, 18, 20, 25 keV とし、X 線エネルギーが 12 keV までは DCCM311 で高分解能化と Wolter Mirror で集光した。また、アナライザーは Scienta Omicron 社製 R-4000 を使用し、高運動エネルギーの光電子をアナライザーの検出上限の 10 keV 以下まで減速させるため、松定プレジジョン社製 HERR-20P を用いて適宜電圧を印加した。エネルギー校正は、Au から取得したフェルミ端を 0.0 eV 及び Au 4f_{7/2} を 84.0 eV とした。光電子脱出角度(ToA)は 85°、パスエネルギーは 200 eV、スリットサイズは短辺方向を 0.5 mm とした。評価試料は、高配向性熱分解グラファイト(HOPG)、C 板、Al 板、Cu 板、Ag 板、Pt 板を用いた。

【結果】Figure 2 (a)に様々な X 線エネルギーで取得した HOPG の C 1s スペクトルを示す。また、Figure 2 (b)に取得した C 1s スペクトルより算出した結合エネルギー値の励起 X 線エネルギー依存性を示す。図中に示す破線は理論直線 [2]、点線は各測定結果から最小二乗法を用いて算出した直線である。実測値及び理論値の傾きはそれぞれ 0.0510 と 0.0429 であった。Figure 2 より、励起 X 線エネルギーの増加に伴い、C 1s スペクトルが高結合エネルギー側に 6 keV と 25 keV を比較すると最大 1.4 eV シフトすることが観測された。しかし、実測値から算出した傾きと理論値では僅かに異なっており、理論値よりもリコイルエネルギーの影響が大きいことが明らかとなった。発表では、HOPG に加えて C 板、Al 板、Cu 板、Ag 板、Pt 板も同様に理論値と比較を行った結果について議論する。

[1] S. Yasuno *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **94**, 115113 (2023). [2] Y. Takata *et al.*, Phys. Rev. B **75**, 233404 (2007).

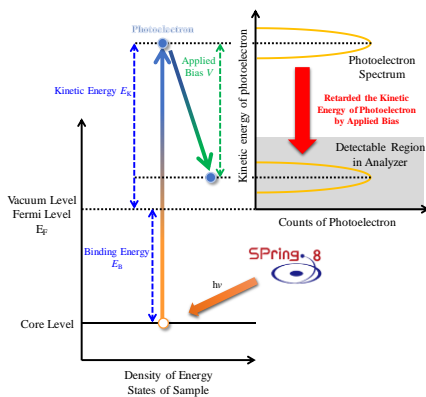


Fig. 1 Schematic of HE-HAXPES

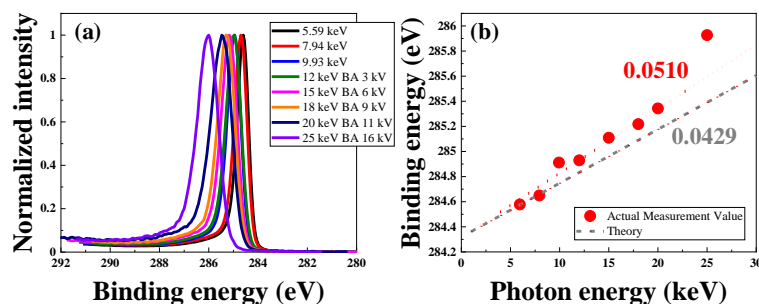


Fig. 2 (a) C 1s spectra from HOPG with various X-ray energy sources, (b) binding energy of C 1s spectra depends on X-ray energies.

マルチ吸収端時間分解クイック XAFS 計測システムの構築

Development of multi-edge time-resolved quick XAFS measurement system

高輝度セ¹, 都立大院理², 東大院工³ ○宇留賀 朋哉¹, 金子 拓真¹, 吉川 聡一²,
米里 健太郎³, 河底 秀幸², 今井 康彦¹, 鈴木 康介³, 山添 誠司²

JASRI¹, TMU², UTokyo³, °Tomoya Uruga¹, Takuma Kaneko¹, Soichi Kikkawa², Kentaro Yonesato³,
Hideyuki Kawasoko², Yasuhiko Imai¹, Kosuke Suzuki³, Seiji Yamazoe²

E-mail: urugat@spring8.or.jp

我々はこれまで、SPring-8 ビームライン BL36XU において、オペラント時間分解クイック XAFS 計測法の開発を行い、固体高分子形燃料電池カソード触媒の電位過渡応答反応や、材料物質の酸素吸蔵・放出過程における電子状態・構造変化に対する研究を進めてきた[1]。XAFS 法は測定対象元素の化学状態・局所構造に関する情報を選択的に得ることができるため、材料物質・デバイス内で起こる化学反応を原子レベルでその場追跡できる強力な手法として広く利用されている。本研究では、これまで難しかった複数の X 線吸収端に対するオペラント時間分解クイック XAFS 計測を連続的に行うシステムを開発したので報告する。

本計測システムは、高濃度試料に対する透過法 XAFS 計測システムと、低濃度試料に対する蛍光法 XAFS 計測システムから構成される。透過法 XAFS 計測では、2 つの吸収端計測用の不活性ガスを流入した I0・I1 イオンチェンバー各 2 台を自動 X ステージ上に設置し、2 吸収端での XAFS 計測の迅速切替えを行った。また、蛍光法 XAFS 計測では、高フラックス蛍光 X 線・散乱 X 線下での高速 XAFS 計測を実現するため、2 次元 X 線ピクセル検出器の前面に散乱 X 線除去フィルターとソーラースリットを設置した計測システムを採用した。広 X 線エネルギー領域 (4.5~35 keV) の計測に対応するため、Merlin Quad 検出器 (Si 素子、4.5~20 keV 用) と Lambda 750K 検出器 (CdTe 素子、8~35 keV 用) の 2 台の 2 次元 X 線ピクセル検出器を自動 XZ ステージ上に設置し、迅速切替えを行った。

発表では、計測システムの概要と計測事例について報告を行う。

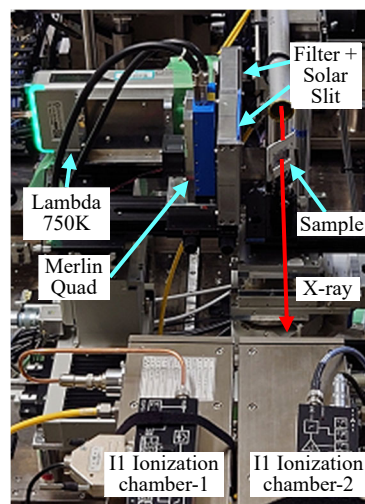


Fig.1 Layout of multi-edge XAFS measurement system.

[1] T. Uruga, M. Tada, O. Sekizawa, Y. Takagi, T. Yokoyama, Y. Iwasawa, *Chem. Rec.*, **19**, (2019) 1444.

謝辞

本成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務 (JPNP20003) の結果得られたものです。

電子線照射処理前後における CFRTP (CF/PPS) の衝撃値評価

Impact value evaluation of CFRTP (CF/PPS) prior to and after electron beam irradiation.



東海大院工¹, KISTEC², ○(M1C)入江 紘嵩¹, 伊比井 亜弥音¹, 木村 英樹¹,
佐川 耕平¹, 西 義武^{1,2}, 内田 ヘルムート貴大¹

¹Tokai Univ., ²KISTEC., ○(M1C)Hiroataka IRIE¹, Ayane IBII¹, Hideki KIMURA¹,
Kouhei SAGAWA¹, Yoshitake NISHI^{1,2}, Helmut Takahiro UCHIDA¹

E-mail(CA): helmutuchida@tokai.ac.jp

炭素繊維強化プラスチック (CFRP; Carbon Fiber Reinforced Plastics)は炭素繊維と熱硬化性樹脂を複合化したもので高強度かつ軽量の利点を持つ。引張比強度・比弾性率は鉄・アルミの約3~9倍であり、近年では航空機や自動車の材料として使用されている[1]。しかし熱硬化性樹脂を母材とした CFRP は成形に時間がかかり、リサイクル性に課題を抱えている。そこで母材を熱可塑性樹脂とした CFRTP (Carbon Fiber Reinforced Thermo Plastics)が、従来の CFRP と比較して成形時間が早く量産性に優れ、リサイクル性が良好といった点が注目されている。一方で CFRP と比較し、強度や弾性率、接着性に劣るという課題も抱えている[1]。電子線照射処理は電子を高真空中にて高電圧で加速し、試料に電子を均質に照射することでエネルギーを与えて様々な反応を引き起こすことができる、工業的に確立している手法である。主に利用されている効果として分子鎖間で結合を形成する「架橋」、モノマーが結合し重合する「グラフト重合」、モノマーが重合によって高分子化する「硬化」、高分子が主鎖の切断によって低分子化する「崩壊」が挙げられる[2]。

本研究では CFRTP の母材を熱可塑性樹脂であるポリフェニレンサルファイド(PPS)に選定し、複合化前の炭素繊維に照射を行い、照射条件に応じた衝撃値をもとに検討した。CFRTP は平織の炭素繊維(三菱レイヨン: TR3110M)3枚とシート状に熱圧着し成型した PPS 粉末を4枚用い、それぞれ交互に重ね合わせてホットプレスで加圧熱法(300°C, 2 MPa, 8 min)により作製した(Fig.1)[3-5]。この試料を80 mm×10 mmに切り出し、シャルピー衝撃試験(Fig.2)を行い、それぞれの照射量ごとの衝撃値を測定・比較した。この結果、未照射と比較し適切な条件による照射処理を行ったものは衝撃値の強靱化が確認された。

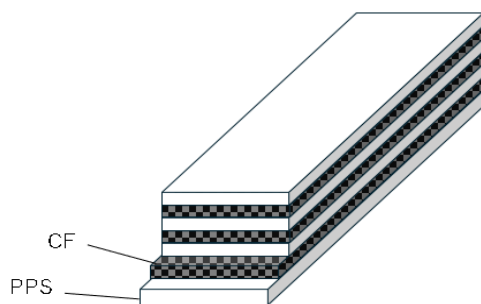


Fig.1 Laminated structure of CFRTP (CF/PPS)

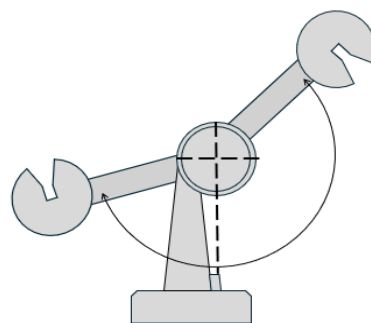


Fig.2 Charpy Impact Tester

(参考文献)

- [1]平松 徹:『よくわかる炭素繊維コンポジット入門』, 日刊工業新聞社, (2012), pp.38-223
- [2]奥村 康之:『電子線照射装置の工業利用への展開』, *J. Vac. Soc. Jpn.*, **60**, (2016), 1-4.
- [3]Y. Nishi, H. Takei, K. Iwata, M. Salvia, A. Vautrin, *Mater.Trans.*, **50**, (2009), 2826-2832.
- [4]H. Takei, K. Iwata, M. Salvia, A. Vautrin, Y. Nishi, *Mater. Trans.*, **51**, (2010), 2259-2265.
- [5]H. Takei, M. Salvia, A. Vautrin, A. Tonegawa, Y. Nishi, *Mater. Trans.*, **52**, (2011), 734-739

イオンビームプロファイルの測定によるウィーンフィルタの分離性能評価

Evaluation of Wien filter performance by Measuring the separated Ion beam profile

新居浜高専¹, 滋賀県立大学²

○(B)坂本 和輝¹, (B)野間 祐希¹, (B)高橋琴音¹, 平田傑之¹, 松友 真哉¹, 浅地豊久²

NIT, Niihama Coll.¹, Univ. of Shiga Pref.²

○Kazuki Sakamoto¹, Yuki Noma¹, Kotone Takahashi¹, Takayuki Hirata¹, Shinya Matsutomo¹,

Toyohisa Asaji²

E-mail: m1101819@niihama.kosen-ac.jp

背景と目的

電子サイクロトロン共鳴(ECR)イオン源は、医療、物理などの様々な分野で利用されているが、従来の装置は大型であり汎用的な材料開発等の分野に普及していない。そこで本研究では小型 ECR イオン源の開発を目的とし、イオンビームの質量分離には小型化が容易な電磁場直交型質量分離器（ウィーンフィルタ：WF）を採用している。本研究では WF の質量分離性能を評価するため、ワイヤプローブを用いてイオンビームプロファイルを測定した。

実験方法

小型 ECR イオンビーム装置の概略図を Fig.1 に示す。イオン源から引き出されたイオンビームは WF を通過する際に電磁場から力を受け、必要なイオン種が直進する。WF 出口から 328.5 mm 下流に設置したワイヤプローブ（Mo, $\phi 0.1$ mm）を走査しイオンビーム電流の強度分布を得る。本実験では Ar ガスを使用して引出電圧 3 kV でイオンビームを引き出し、WF で Ar⁺を直進させた。また、イオンが分離される y 方向とそれに垂直な x 方向のビームプロファイルを装置の軸を中心に ± 20 mm の範囲で測定した。

実験結果と考察

ファラデーカップで総ビーム電流量を測定した結果、Ar⁺が 0.222 μ A、Ar²⁺が 0.037 μ A となった。

Fig.2 (a)に y 方向のビームプロファイル測定結果を示す。(a)において、ワイヤ位置-0.7、-4.4、-12.3 mm のときにピークが見られる。-0.7 mm のピークは中心付近で確認できることから Ar⁺と考えられる。-4.4

mm のピークは不純物、-12.3 mm のピークは Ar²⁺と考えられる。

Fig.2 (b)に x 方向のビームプロファイル測定結果を示す。4.8 mm の位置でピークが見られる。半値幅は約 5.9 mm であり y 方向の Ar⁺の半値幅より 4 mm 程度大きいことが分かった。また、ピーク形状が左右非対称であり、イオンビーム電流値が中心（0 mm）付近で横ばいになった後減少している。このことから、WF で分離したイオンが y 軸上に分布しておらず、x 軸方向にずれて分布してしまっていることが予測される。この原因として、イオンビームの中心軸が x 軸方向にずれているか、WF の電磁場が想定よりも歪んでいることなどが考えられ、改善の余地がある。

まとめ

Ar のビームプロファイルの測定を行った結果、y、x 方向の強度分布が得られた。当日はビームプロファイルの引出電圧、静電レンズ電圧依存性の検証および WF 上流側に絶縁管を設置した実験について報告する。また、ワイヤプローブとスリットを併用して 40 \times 40 mm の正方形領域の 2 次元のイオンビームプロファイル測定を行えば詳細な検証が可能であるが、データ数が非常に多くなるため、測定の自動化が課題である。

参考文献

[1] 野間祐希, 他第 71 回応用物理学会 春季学術講演会(2024)

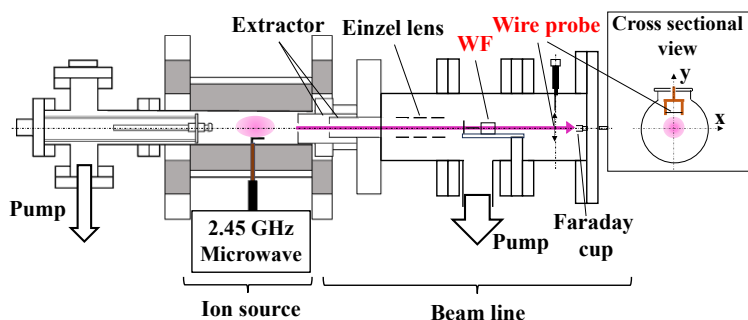


Fig.1 Schematic drawing of the desktop-sized ECR Ion beam system

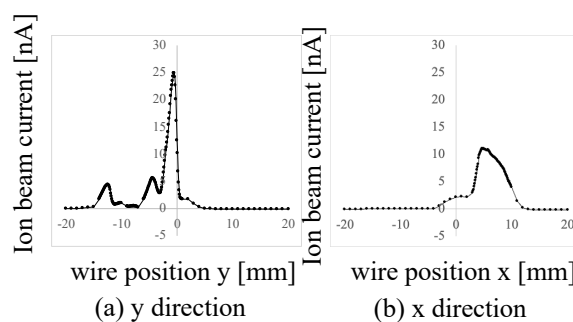


Fig.2 Separated Ar ion beam profile

超低地球軌道 (VLEO) 原子状酸素・窒素分子環境の地上対照試験 Ground-based simulation of atomic oxygen/molecular nitrogen environment in VLEO

神戸大院工 横田 久美子、西岡 燦太、中山 開智、上田 一輝、竹中 優太、[○]田川 雅人

Kobe Univ., Kumiko Yokota, Santa Nishioka, Kaichi Nakayama,

Kazuki Ueta, Yuta Takenaka and [○]Masahito Tagawa

E-mail: tagawa@mech.kobe-u.ac.jp

宇宙ビジネスの急速な拡大に伴い、今後、低軌道では多くの新規材料や各種コンポーネントが使用される。このような宇宙機用材料等は地上とは全く異なる環境下でのミッションを完遂させる必要があるため、打上げ前に耐環境性試験を実施し、その宇宙環境下での耐久性を保証する必要がある。耐衝撃試験、振動試験、熱真空試験、耐放射線や耐紫外線試験などが代表的なものであるが、低地球軌道 (LEO) や超低地球軌道 (VLEO) では耐原子状酸素試験が重要な項目になる。現在、VLEO に対応した地上原子状酸素・窒素分子混合環境の地上試験が可能な機関は国内では神戸大のみである。本ポスターでは国内で唯一である神戸大学 VLEO 原子状酸素環境試験装置 (図 1) について紹介し、その試験環境を紹介する[1]。さらに本装置を用いて行ったいくつかの照射結果と、実際の VLEO 環境でのフライトデータとの比較結果[2]についても紹介する。

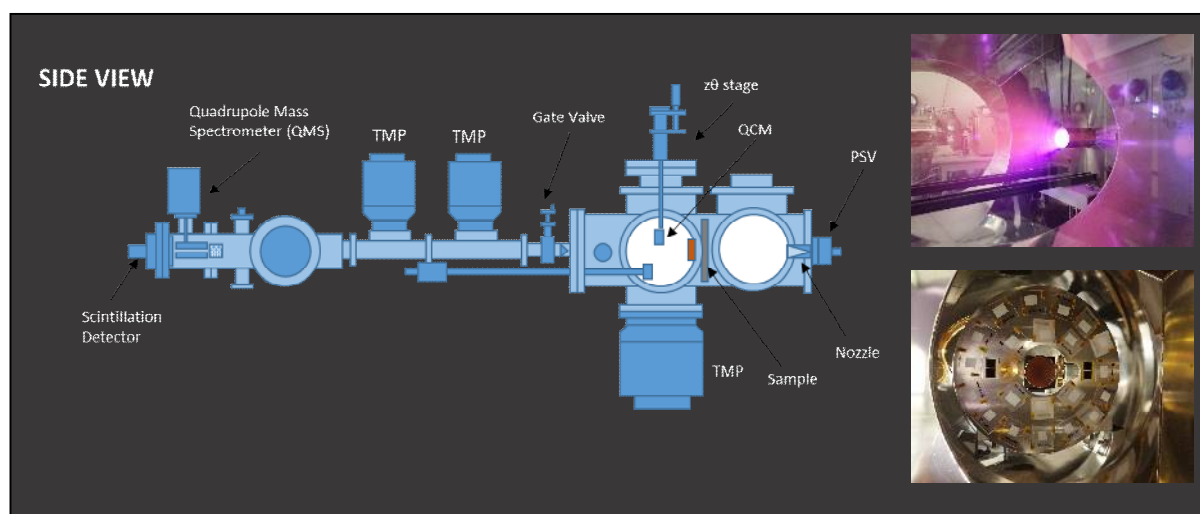


図1 原子状酸素照射実験装置 (左) とレーザープラズマ (右上) およびサンプルホルダー (右下)

- [1] M. Tagawa, R. Okura, W. Ide, S. Horimoto, K. Ezaki, A. Fujita, K. Shoda, K. Yokota, Laser-detonation hyperthermal beam source applicable to VLEO environmental simulations, CEAS Space Journal (2022) in press.
- [2] K. Yokota, M. Tagawa, Y. Fujimoto, W. Ide, Y. Kimoto, Y. Tsuchiya, A. Goto, K. Yukumatsu, E. Miyazaki, S. Imamura, Effect of simultaneous N₂ collisions on atomic oxygen-induced polyimide erosion in sub-low Earth orbit: comparison of laboratory and SLATS data, CEAS Space Journal, Vol.13, No.3, 2021 pp389-397.

7 ビーム応用 | 一般セッション(口頭講演): 7.1 X線技術

[16a-C43-1~11] 7.1 X線技術

[16a-C43-1]

250~550 eV領域において高回折効率と高spectral fluxを呈する軟X線平面結像型分光器用のAu/Niラミナー型回折格子の設計

○小池 雅人^{1,2,3}、羽多野 忠²、ピロジコフ アレキサンダー¹、大上 裕紀⁴、村野 孝訓^{5,3}、垣尾 翼⁴、越谷 翔悟⁵、寺内 正己² (1.量研関西光量子研、2.東北大多元研、3.大阪公大院工、4.島津デバイス部、5.日本電子SA事業ユニット)

[16a-C43-2]

小型高強度レーザーを用いた極超短パルス軟X線レーザーの開発に関する研究

○チン タンフン¹、石野 雅彦¹、長谷川 登¹、錦野 将元¹、近藤 公伯¹、西井 唯人²、渡辺 恵深²、難波 慎一²、佐藤 稜馬³、杉浦 使³、空本 龍弥³、東口 武史³ (1.量研関西研、2.広大先進理工、3.宇大工)

[16a-C43-3]

連続供給液体金属ターゲットによる極端紫外光源

○空本 龍弥¹、杉浦 使¹、荻原 彩華¹、森田 大樹¹、難波 慎一²、東口 武史¹ (1.宇都宮大、2.広島大)

[16a-C43-4]

固体レーザーマルチビーム照射によるEUV変換効率

○杉浦 使¹、矢澤 隼斗¹、森田 大樹¹、難波 慎一²、東口 武史¹ (1.宇都宮大、2.広島大)

[16a-C43-5]

Atomic site occupancy of the Si dopant in κ -Ga₂O₃(001) studied by photoelectron holography

○(D)YUHUA TSAI^{1,2}, Yusuke Hashimoto³, Piero Mazzolini^{4,5}, Parisini Antonella⁴, Bosi Matteo⁵, Seravalli Luca⁵, Tomohiro Matsushita³, Yoshiyuki Yamashita^{1,2} (1.NIMS, 2.Kyushu Univ., 3.NAIST, 4.UNIPR, 5.IMEM-CNR)

[16a-C43-6]

変形・劣化を動的可視化するX線位相イメージングの高速化研究

○房 怡晨¹、小林 伸次¹、登坂 俊亮¹、白桃 拓哉²、林 杉³、上田 亮介¹、岡島 敏浩³、百生 敦¹ (1.東北大、2.(株)デンソー、3.愛知シンクロトロン)

[16a-C43-7]

ns時分割X線トポグラフィーの開発

○米山 明男¹、石地 耕太郎¹、竹谷 敏²、八木 貴志²、兵藤 一行³、平野 馨一³、岸本 俊二³ (1.SAGA LS、2.産総研、3.高エネ研)

[16a-C43-8]

3 GeV高輝度放射光施設ナノテラスBL09WにおけるX線イメージング

○矢代 航^{1,2,3,4}、梁 暁宇²、亀沢 知夏¹、住石 海希⁴ (1.東北大SRIS、2.東北大多元研、3.東大院工物工、4.東北大院工ファイン)

[16a-C43-9]

X線を利用した3次元せん断波エラストグラフィの検討

○那須川 蓮¹、亀沢 知夏²、中江 保一³、佐久間 保孝³、栗林 勝³、梁 暁宇⁴、兵藤 一行⁵、米山 明男^{5,6}、矢代 航^{1,2,4,7} (1.東北大工、2.東北大SRIS、3.リガク、4.東北大多元研、5.高エネ研、6.佐賀LS、7.東大応物)

[16a-C43-10]

Li_xMO_2 系Liイオン電池正極材料におけるコンプトン散乱を用いた電位測定法の検討

○天田 洋輔¹、巩 春侠²、星 和志¹、鈴木 宏輔¹、高橋 学¹、櫻井 浩¹ (1.群馬大学、2.北陸先端科学大学)

[16a-C43-11]

X線ライトシート顕微鏡の三次元データの局在解析で達成される一桁空間分解能

○香村 芳樹¹、ディーン シエラ¹、高野 秀和¹、石川 哲也¹ (1.理化学研究所)

250～550 eV 領域において高回折効率と高 spectral flux を呈する 軟 X 線平面結像型分光器用の Au/Ni ラミナー型回折格子の設計

Design of soft X-ray high diffraction efficiency and spectral flux

Au/Ni-bilayer-coated laminar-type diffraction grating

for soft X-ray flat-field spectrograph in a region of 250–550 eV

量研関西光量子研¹, 東北大多元研², 大阪公大院工³, 島津製作所デバイス部⁴,
日本電子 SA 事業ユニット⁵ ○小池雅人^{1,2,3}, 羽多野忠², ピロジコフ S. アレキサンダー¹,
大上裕紀⁴, 村野孝訓⁵, 垣尾翼⁴, 越谷翔悟⁵, 寺内正己²

KPSI, QST¹, IMRAM, Tohoku Univ.², Dept. of Eng., Osaka Metropolitan Univ.³, Device Dept.
Shimadzu Corp.⁴, SA Business Unit, JEOL Ltd.⁵ ○Masato Koike,^{1,2,3,a)} Tadashi Hatano,² Alexander
S. Pirozhkov,¹ Yuki Oue,⁴ Takanori Murano,⁵ Tubasa Kakio,⁴ Sogo Koshiya,⁵ and Masami Terauchi²

E-mail: koike.masato@qst.go.jp

C-K (277 eV), N-K (392 eV), および O-K (524 eV) の発光を含む所謂水の窓領域における軟 X 線平面結像型球面回折格子分光器の検出限界と感度を向上させるために, 分光器, 不等間隔溝ラミナー型球面回折格子, および表面物質について最適化する設計を行った。この目的のために, 検出感度と相関がある回折格子で分散されて検出器に入射する光束の量に比例する Spectral Flux¹⁾を性能評価指標に用いた。ラミナー型の溝構造と共に表面物質として Au/Ni 二重層コートの場合を考察した。理由は 400 eV を超えるエネルギー領域では下層の Au, 上層の Ni, 真空の屈折率が下から上に向かって階段状に増加するため, 経験上 Ni 層の厚さに応じて反射率が Ni バルク表面の場合より上回る²⁾ことが見込まれるためである。

Fig.1 は刻線密度: 1500 本/mm, 溝深さ: 7.4 nm の Au 表面のラミナー型回折格子に Ni 膜を 1 nm から 10 nm まで積層し, 入射角が 86.0° の場合の回折効率のエネルギー依存性を示す図である。予想通り >400 eV の領域では Ni の膜厚により Ni バルク表面の場合に比べて O-K で回折効率が最大で 30%程度, Fe-L で 400%程度まで増加することがわかる。発表では, 非球面波露光 (AWR) を想定したホログラフィック不等間隔 (VLS) 球面回折格子の設計についても述べる。

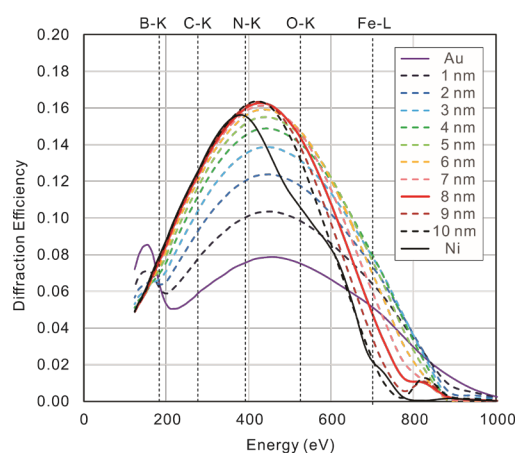


Fig.1 Photon energy dependance of diffraction efficiency of Au/Ni bilayer gratings having thickness of Ni layer of 1, ..., 10 nm. For the reference, diffraction efficiencies for Au and Ni single layer coated gratings are also shown.

1. T. Hatano et al., Appl. Opt., **60**, 4993-4999 (2021).

小型高強度レーザーを用いた極超短パルス 軟 X 線レーザーの開発に関する研究

Research on development of ultrashort pulse soft X-ray lasers using compact high-intensity lasers

量研関西研¹, 広大先進理工², 宇大工³

○チン タンフン¹, 石野 雅彦¹, 長谷川 登¹, 近藤 公伯¹, 錦野 将元¹, 西井²唯人,
渡辺 恵深², 難 波慎²一, 佐藤 稜馬³, 杉浦 使³, 空本 龍弥³, 東口 武史³

KPSI (QST)¹, Hiroshima Univ.², Utsunomiya Univ.²

○Thanh-Hung Dinh¹, Masahiko Ishino¹, Noboru Hasegawa¹, Kiminori Kondo¹,
Masaharu Nishikino¹, Yuito Nishii², Keishin Watanabe², Shinichi Namba², Ryoma Sato³,
Tsukasa Sugiura³, Tatsuya Soramoto³, Takeshi Higasiguchi³

E-mail: dinh.thanhhung@qst.go.jp

The EUV lithography which uses 13.5 nm wavelength light for imaging has been put into high volume manufacture of semiconductor, recently. The current light source employs EUV emission from laser-produced tin plasma (LPP). This emission is incoherent and has a pulse duration of the order of nanoseconds, as long as that of the driver laser. Free-electron lasers (FELs) emitting coherent light with wavelength as short as angstroms offer new possibilities to advanced nanolithography [1]. It is important to note that the typical pulse duration of the FEL is three to six orders of magnitude shorter than those of LPP sources. This raises questions about the effects of such short pulse duration on the involved optics and resist material. To address these questions, we have launched a benchmark study in National Institutes for Quantum Science and Technology (QST) [2-4]. This study aims to develop compact ultrashort pulse soft X-ray lasers (XRLs) based on laser-driven techniques, employing the Grazing Incidence Pumping scheme (GRIP) for efficient lasing (Fig. 1). Here, we report the development of Ni-like ion plasma lasers of Mo and Ag which operate at the wavelength of 18.9 and 13.9 nm, respectively.

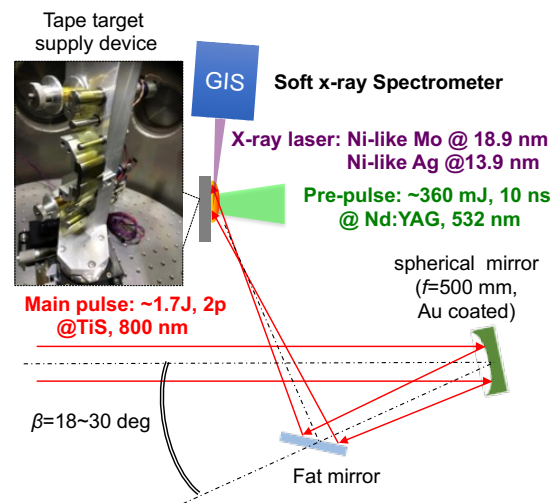


Fig. 1 Experimental setup for laser plasma-based soft x-ray laser.

References

1. H. J. Levinson, in *EUV-FEL Workshop* (2022).
2. Y. Hosaka *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 073109 (2019).
3. Y. Hosaka *et al.*, *J. Photopolym. Sci. Technol.* **34**, 95 (2021).
4. T.-H. Dinh *et al.*, *ALPS* (2024).

連続供給液体金属ターゲットによる極端紫外光源

Extreme ultraviolet light source using a regenerative liquid metal target

宇都宮大学¹ 広島大学², °空本 龍弥¹, 杉浦 使¹, 荻原 彩華¹, 森田 大樹¹, 難波 慎一²,
東口 武史¹

Utsunomiya Univ.¹, Hiroshima Univ.², °Tatsuya Soramoto¹, Tsukasa Sugiura¹, Ayaka Ogiwara¹,
Hiroki Morita¹, Shinichi Namba², and Takeshi Higashiguchi¹

E-mail: tatsuya.soramoto.1115@gmail.com

最新の半導体露光装置には、波長 13.5 nm の EUV 光源が用いられている。半導体集積回路の高性能化に伴い、光源の短波長化が要求されている。次世代の露光用光源には波長 6.x nm の Beyond-EUV が挙げられており、'Blue-X'ではさらなる短波長光源として、波長 2.3 - 4.4 nm の水の窓軟 X 線が提案されている。水の窓軟 X 線のターゲット候補には重元素である Bi や Au, Mo などが挙げられる。これまでの高輝度かつ研究室規模の水の窓軟 X 線光源は、主に固体金属ターゲットによるシングルショットベースであったため、高繰り返しでの長時間運転は困難であった。しかし、ターゲット候補のひとつである Bi は、融点が低く液体化が比較的容易であることから、フィラメント状にすることにより真空中でターゲットを連続供給でき、光源を高繰り返し動作することが可能である。そこで、本研究では、連続供給可能な液体金属ターゲット生成装置を開発し、水の窓軟 X 線光源の高繰り返しでの 2 時間動作を確認した。

装置内に充填した固体 Bi をヒーターで加熱することで液体化させた後、窒素で加圧することにより装置下部に装着したノズルから液体金属ターゲットを生成した。ターゲット供給時間は約 2 時間であった。液体 Bi ターゲットに Nd:YAG レーザー（波長: 1064 nm, パルス幅: 6 ns, パルスエネルギー: 600 mJ, 繰り返し周波数: 10 Hz）を集光照射した。入射レーザーの光軸から 45°方向に配置した斜入射分光器で軟 X 線スペクトルを 1 分おきに測定した。図 1 は観測されたレーザーパルスエネルギーと水の窓軟 X 線領域の発光光子数の時間安定性である。パルスエネルギーは時間経過とともに減少し、光子数もそれに伴い減少していく傾向がみられた。平均光子数は 10^{12} - 10^{13} photons/(nm · sr · shot) 程度であった。本発表では、ターゲットの時間安定性や水の窓軟 X 線の時間積分スペクトル、高速イオンのエネルギースペクトルについても報告する予定である。

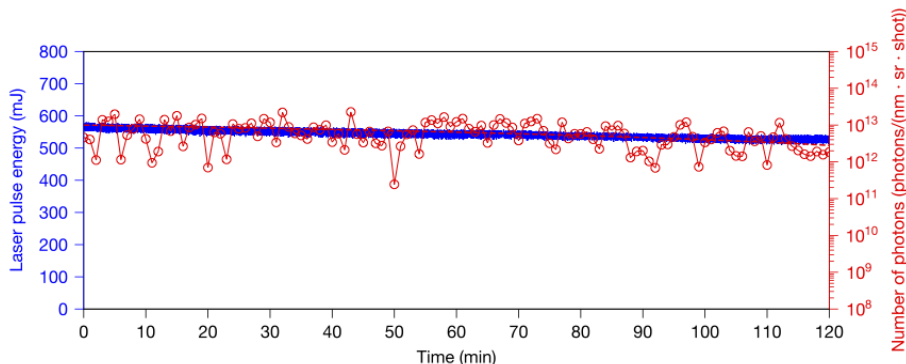


Fig. 1. Time stability of laser pulse energy and number of photons.

固体レーザーマルチビーム照射による EUV 変換効率

The EUV conversion efficiency by solid-state-laser multi-beam irradiation

宇都宮大学¹ 広島大学², °杉浦 使¹, 矢澤 隼斗¹, 森田 大樹¹, 難波 慎一², 東口 武史¹

Utsunomiya Univ.¹, Hiroshima Univ.², °Tsukasa Sugiura¹, Hayato Yazawa¹, Hiroki Morita¹,

Shinichi Namba², and Takeshi Higashiguchi¹

E-mail: tsukasa.sugiura.0910@gmail.com

先端半導体集積回路は年々回路線幅の微細化が求められており、露光用の EUV 光源を高出力化させることが課題である。EUV 光源の平均出力は今後 500 W まで求められるとされ、駆動用の CO₂ レーザーの出力も 50 kW 程度が要求される。しかし、CO₂ レーザーは光学系や電極の損傷による増幅率の限界や、ビーム品質の悪化などの問題を抱えているため、高出力化の限界を迎えている。EUV 露光装置の消費電力は非常に大きく、露光装置を量産導入している TSMC の消費電力は、製造拠点の台湾全体で今後 12%にまで及ぶと予想される。CO₂ レーザーの消費電力は EUV 露光装置の大半を占めていることから、CO₂ レーザーを高出力化させていくことは現実的ではない。そこで、新たなレーザー照射方式としてマルチビーム照射を提案する。レーザーを 1 台ではなく複数台同時に照射することで、1 台あたりの出力を抑えることができる。本研究では、マルチビーム照射による EUV 変換効率のビーム本数依存性を観測した。

実験装置の概略図を Fig. 1. に示す。波長 1064 nm、パルス幅 16 ns の Nd:YAG レーザーを固体 Sn ターゲットに照射した。レーザーの総パルスエネルギーを 500 mJ に固定し、レーザーの本数を 1 から 5 本とし、各ビームのレーザー強度を 2×10^{11} W/cm² に設定した。EUV エネルギーメーターを入射レーザー軸に対して 45°に配置し、各ビーム本数の EUV 変換効率を観測した。Fig. 2. に EUV 変換効率のビーム本数依存性を示す。1 ビーム照射の変換効率が 1.7%であったのに対して、2 ビーム照射(±60°)では 4.7%に向上した。その他の照射条件についても、1 ビーム照射よりも高い変換効率を観測した。このように変換効率が向上した理由は、複数ビームを一点に照射したことにより、プラズマ膨張損失を抑制できたからであると考えられる。したがって、高出力な EUV 変換効率を得るためには、単一のレーザーに限定する必要はないことが分かった。本発表では EUV 変換効率に加えて、EUV 光源像や高速イオンのエネルギー分布についても報告する予定である。

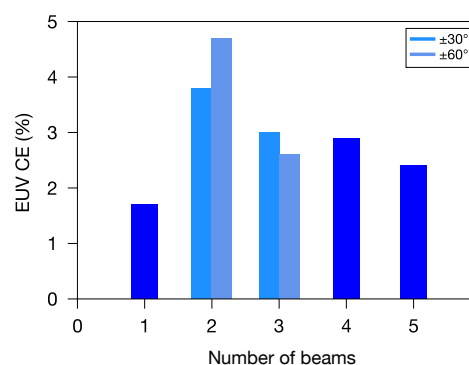
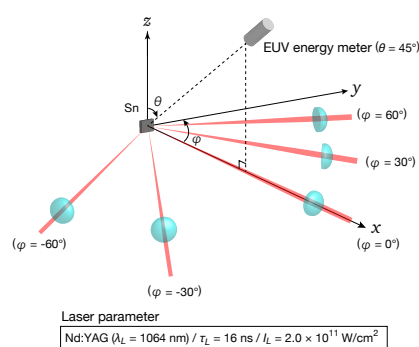


Fig. 1. Schematic diagram of experimental setup. Fig. 2. The number of beams versus the EUV CE.

Atomic site occupancy of the Si dopant in κ -Ga₂O₃(001) studied by photoelectron holography

NIMS¹, Kyushu Univ.², NAIST³, UNIPR⁴, and IMEM-CNR⁵,

[○](D4) YU-HUA, TSAI^{1,2}, Yusuke Hashimoto³, Piero Mazzolini^{4,5}, Antonella Parisini⁴, Matteo Bosi⁵, Luca Seravalli⁵, Tomohiro Matsushita³, and Yoshiyuki Yamashita^{1,2}

E-mail: TSAI.YU-HUA@nims.go.jp

For Ga₂O₃, there are six crystal polymorphs of Ga₂O₃: α -, β -, δ -, γ -, ϵ -, and κ -Ga₂O₃. Among them, β -Ga₂O₃ has received the most attention due to its highest thermal stability.¹ Recently, the orthorhombic κ -Ga₂O₃ has gained attention due to its large spontaneous polarization and its ferroelectricity.² For κ -Ga₂O₃, Si is used as the dopant to control the electrical properties.² There are three inequivalent Ga atomic sites in κ -Ga₂O₃; octahedral (Octa), pentahedral (Penta), and tetrahedral (Tetra). Therefore, in order to control the electrical properties, the atomic structure of active dopant site in Si-doped κ -Ga₂O₃ should be clarified. In the present study, we investigated atomic positions and the chemical states of the Si dopants for Si-doped κ -Ga₂O₃ using photoelectron spectroscopy (PES) and photoelectron holography (PEH).

The Si-doped κ -Ga₂O₃ epitaxial layers were grown on a c-plane sapphire substrates prepared by the MOVPE method. The PEH measurements were performed at the BL25SU beamline of SPring-8.

Figure 1(a) shows the Ga 3*p* and Si 2*p* PES spectrum for the Si-doped κ -Ga₂O₃(001) measured at an incident photon energy of 911 eV. The corresponding PEH for Si 2*p* is shown in Fig. 1(b). Figure 1(c) shows the experimental and the simulated Si 2*p* PEHs for the Si-doped κ -Ga₂O₃(001). By comparing the experimental and the simulated PEHs, the Si dopant site is attributed to the mixture of the Octa, Penta, and Tetra Si_{Ga} sites. The ratios for the Tetra, Penta, and Octa Si_{Ga} sites are estimated to be 51.0%, 35.2%, and 13.8%, respectively. The more detailed discussions will be performed in our presentation.

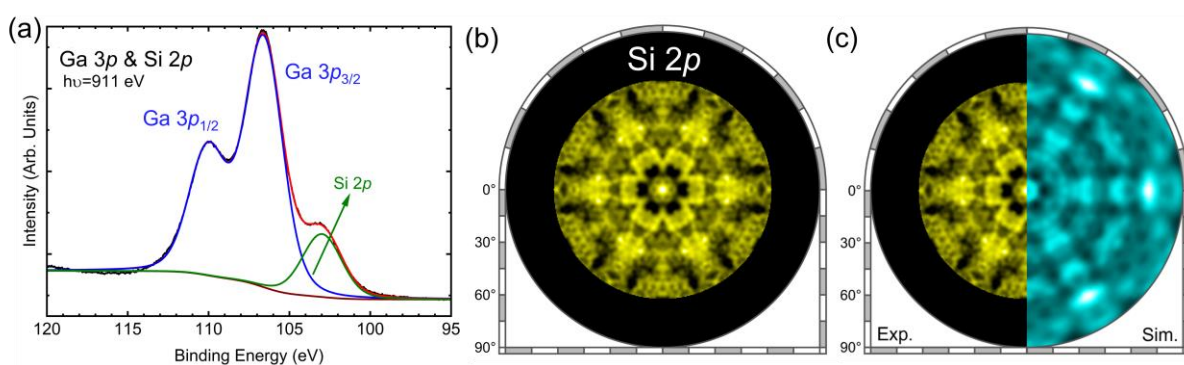


Figure 1: (a) Ga 3*p* and Si 2*p* PES spectrum for Si-doped κ -Ga₂O₃(001). (b) PEH of Si 2*p* for Si-doped κ -Ga₂O₃(001). (c) Experimental (yellow) Si 2*p* and the simulated (blue) PEHs for the Si-doped κ -Ga₂O₃(001).

Reference

1. Y. Wang, J. Su, Z. Lin, J. Zhang, J. Chang, and Y. Hao, *Journal of Materials Chemistry C* **10**, 13395 (2022).
2. P. Mazzolini, Z. Fogarassy, A. Parisini, F. Mezzadri, D. Diercks, M. Bosi, L. Seravalli, A. Sacchi, G. Spaggiari, D. Bersani, O. Bierwagen, B.M. Janzen, M.N. Marggraf, M.R. Wagner, I. Cora, B. Pécz, A. Tahraoui, A. Bosio, C. Borelli, S. Leone, and R. Fornari, *Adv. Funct. Mater.* **33**, 2207821 (2022).

変形・劣化を動的可視化する X 線位相イメージングの高速化研究

High-Speed X-Ray Phase Imaging for dynamic visualization of deformation and deterioration

東北大¹, (株)デンソー², あいちシンクロトロン光センター³, [○]房 怡晨¹, 小林 伸次¹, 登坂 俊亮¹, 白桃 拓哉², 林 杉³, 上田 亮介¹, 岡島敏浩³, 百生 敦¹

Tohoku Univ.¹, DENSO CORP.², AichiSR³, [○]Fang Yichen¹, Shinji Kobayashi¹, Shunsuke Tosaka¹, Takuya Shiramomo², Shan Lin³, Ryosuke Ueda¹, Toshihiro Okajima³, Atsushi Momose¹

E-mail: fang.yichen.p1@dc.tohoku.ac.jp

X 線イメージングは、医療、非破壊検査といった様々な分野で活用されている。ただし、高分子材料などの軽元素組成の試料に対しては、吸収イメージングでは感度が低く、高コントラストが得られる位相イメージングが注目されている。X 線 Talbot 干渉計による位相イメージング法では吸収像、微分位相像と散乱像を同時に取得できる[1]。これまで、引張試験下の高分子材料観察が実験室 X 線を用いて行われ、散乱像によるクラック発生の観察が報告された[2]。しかし実験室 X 線源では輝度が低く長時間撮影(格子を走査する時間も含めて 10 分程度)を要するため、撮影中には引張りを停止・保持する必要がある。引張停止中には応力緩和による試料の変化が懸念される。本研究では、高分子材料の変形と劣化現象を動的に可視化するために、X 線位相イメージングの高速化を目指した。

実験は白色光を利用できるあいちシンクロトロン光センターのデンソービームライン BL11S3 で、周期 4.8 μ m の位相透過格子 G1 と吸収格子 G2 を用いた Talbot 干渉計を構築して行った。X 線検出器は、CMOS カメラ(浜松 ORCA-FLASH4.0 V3C13440-20CU)、シンチレータ(LuAG100 μ mt)を使用したシステムとした。実効画素サイズは 6.5 μ m \times 6.5 μ m/pixel であった。引張試験は DEBEN 社製の小型引張試験機(MT5000)を使用して行い、引張試験片は G1 の上流側に配置した。試料は高分子材料(ABS 樹脂、ポリスチレン)、炭素繊維複合材料(CFRP)などである。さらに、高速 X 線位相イメージング撮影では、回折格子を停止させることなく 1 方向に定速移動させて得られるモアレ画像の動画像を処理する縞走査法で行った。画像処理により、吸収像、微分位相像、散乱像の動画像を算出した(時間分解能 0.16 秒)。

図 2 には、ポリスチレンの応力-ひずみ曲線と、同時に計測した動画像から、吸収像、微分位相像、散乱像を 1 フレーム抜粋して示した。発表時には他の材料を含めて動画像を示して議論する。

[1] A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 42 L866 (2003).

[2] K. Tsunoda. Tohoku University. Master Thesis (2022).

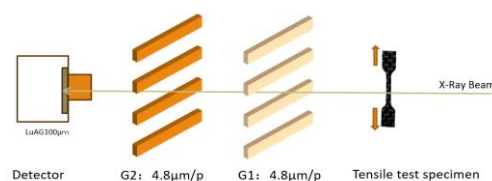


Figure 1 Setup of Talbot interferometer

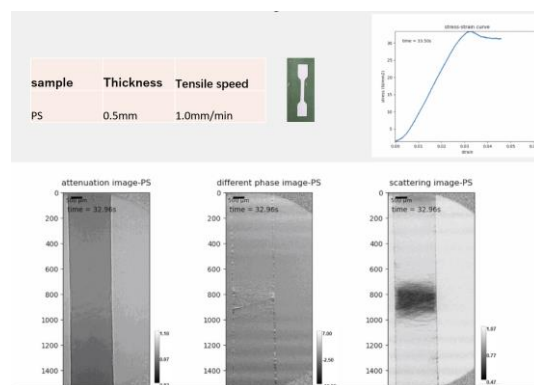


Figure 2 Result of X-ray phase imaging obtained for polystyrene under tensile testing.

ns 時分割 X 線トポグラフィーの開発

ns time-resolved X-ray topography

SAGA LS¹, 産総研², KEK PF³ ○米山明男^{1,3}, 石地耕太郎¹, 竹谷敏², 八木貴志²,
兵藤一行³, 平野馨一³, 岸本俊二³

SAGA LS¹, AIST², KEK PF³, Akio Yoneyama¹, Kotaro Ishiji¹, Satoshi Takeya², Takashi Yagi²,
Kazuyuki Hyodo³, Keiichi Hirano³, Shunji Kishimoto³

E-mail: yoneyama@saga-ls.jp

結晶性材料におけるナノ秒オーダーの熱伝搬可視化等を目的として、Si-APD リニアアレイ検出器[1]を利用した時間分解能 2 ns の X 線トポグラフィー計測系を高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光施設 (KEK-PF) の BL-14C に構築した。使用した APD リニアアレイ型検出器の最短露光時間は 0.5 ns、チャンネル数は 2048 であり、計 1 μ s にわたり X 線強度を 0.5 ns の間隔で計測することができる。また、画素サイズは 100 \times 400 μ m、画素数は 128 素子であり、検出器を垂直方向に 1 次元スキャンすることにより、サンプルから X 線回折をトポグラフィー像として検出することができる。

今回、本トポグラフィー計測系と加熱用パルスレーザー (波長 1064 nm) を組み合わせ (図 1)、Silicon on Insulator (SOI) 表面のシリコン層 (厚さ 6.2 μ m) を対象として、図 2 のタイミングによりレーザー照射によって生じた結晶の熱歪みの時分割トポグラフィー計測 (ポンプ&プローブ (P&P)) を試みた。本発表では、APD リニアアレイ型検出器の詳細、トポグラフィー計測系の仕様、及び P&P 計測結果について報告する。

[1] S. Kishimoto, et. al., AIP Conf. Proc. 1741, 040034(2016).

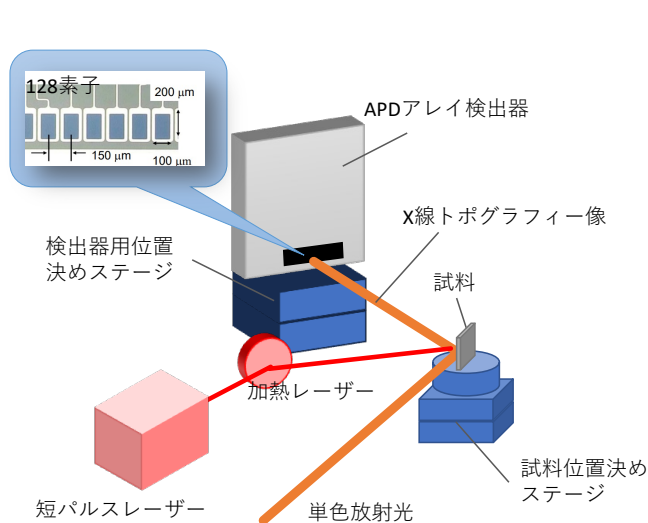


図 1 ns 時分割トポグラフィーの計測系

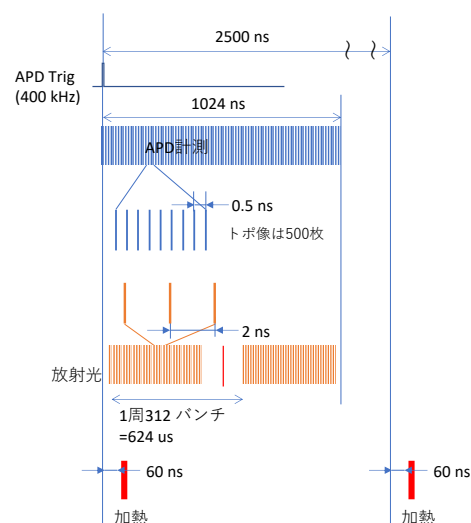


図 2 レーザー加熱と組み合わせた P&P の計測タイミングチャート

3 GeV 高輝度放射光施設ナノテラス BL09W におけるX線イメージング

X-ray Imaging at BL09W in NanoTerasu, a 4th-generation high-brilliance

3 GeV Synchrotron Light Source

東北大 SRIS¹, 東北大多元研², 東大院工物工², 東北大院ファイン⁴

○矢代 航^{1,2,3,4}, 梁 暁宇², 亀沢 知夏¹, 住石 海希⁴

SRIS, Tohoku Univ.¹, IMRAM, Tohoku Univ.², Grad. Eng., Univ. Tokyo³, Grad. Eng., Tohoku Univ.⁴

○Wataru Yashiro^{1,2,3,4}, Xiaoyu Liang², Chika Kamezawa¹, Hiroki Sumiishi⁴

E-mail: wyashiro@tohoku.ac.jp

2024 年 4 月に第四世代 3 GeV 高輝度放射光施設ナノテラスの運用が開始された。ナノテラスのマルチポールウィグラー (MPW) ビームラインの一つである BL09W のエンドステーションにおいては、大面積 (49 mm (水平) × 4 mm (鉛直)) ・大フラックス ・水平偏光の白色放射光ビームが利用できる。光源から 29.3 m の位置に Pt コート平板ミラーを視斜角 2.6 mrad で配置することで、カットオフ 30keV の上はね (水平方向から 5.2 mrad の角度の) ビームでX線イメージングができるように設計されている (低エネルギー側のカットオフは水冷ベリリウム窓で決まる 5.5 keV)。ナノテラスは軟X線 (1 keV 以下) からテンダーX線 (数 keV 程度) 領域のアンジュレータ光源で主にその威力を発揮するが、硬X線領域 (10 keV 程度以上) においても、SPring-8 の偏向電磁石ビームラインの白色放射光と比べて 10 倍程度のフラックスが利用できる。これにより、従来 [1-7] よりも一桁程度高い時間分解能である、 μs 時間分解能の透過 X 線イメージングや、サブ ms の時間分解能の X 線トモグラフィが実現可能であり、高時間分解能 ・高スループットで動的現象の in-situ, in-operand, in-vivo 観察などに活用できると期待される。エンドステーション下流には、面積 3 m × 3 m のオープンスペースが用意されており、様々な装置を持ち込んで、X線イメージング ・トモグラフィを行うことができる。本発表では、ナノテラス BL09W におけるX線イメージングの実例について紹介する。

[1] W. Yashiro *et al.*, *Appl. Phys. Express* **10** (2017) 052501.

[2] W. Yashiro *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** (2017) 112503.

[3] W. Yashiro *et al.*, *Appl. Phys. Express* **11** (2018) 122501.

[4] R. Mashita *et al.*, *J. Synchrotron Rad.* **28** (2021) 322;
<https://www.youtube.com/watch?v=4D2RLSmY0kg>

[5] W. Voegeli *et al.*, *Optica* **7** (2020) 515.

[6] W. Yashiro *et al.*, *J. Phys.: Conf. Ser.* **2380** (2022) 012121.

[7] X. Liang *et al.*, *Appl. Phys. Express* **16** (2023) 072001.

X 線を利用した 3 次元せん断波エラストグラフィの検討

Investigation of 3D shear wave elastography with X-rays

東北大工¹, 東北大 SRIS², リガク³, 東北大多元研⁴, 高エネ研⁵, 佐賀 LS⁶, 東大物工⁷

○(M2) 那須川 蓮¹, 亀沢 知夏², 中江 保一³, 佐久間 保孝³, 栗林 勝³, 梁 暁宇⁴, 兵藤 一行⁵,
米山 明男^{5,6}, 矢代 航^{1,2,4,7}

Tohoku Univ.¹, SRIS, Tohoku Univ.², Rigaku Corp.³, IMRAM, Tohoku Univ.⁴, PF/KEK⁵, SAGA-LS⁶,
The Univ. of Tokyo⁷ ○Ren Nasukawa¹, Chika Kamezawa², Yasukazu Nakaye³, Yasutaka Sakuma³,
Masaru Kuribayashi³, Liang Xiaoyu⁴, Kazuyuki Hyodo⁵, Akio Yoneyama^{5,6}, Wataru Yashiro^{1,2,4,7}

E-mail: nasukawa.ren.t3@dc.tohoku.ac.jp

生体内に生じる悪性腫瘍は、その周りの正常な組織に比べ硬さが異なることが多い。そのため、物質内の硬さの分布を評価することは医療診断にとって有益なことである。医師の触診による診断は一般的に行われているが、触診では腫瘍の位置を特定することは難しい。そこで組織弾性の分布を測定するエラストグラフィと呼ばれる技術がこれまでに開発されてきた。エラストグラフィはひずみエラストグラフィとせん断波エラストグラフィに大別される。ひずみエラストグラフィでは一定の圧力下における組織のひずみを測定するのに対し、せん断波エラストグラフィでは動的な印加圧力により組織内にせん断波を生じさせ、せん断波の伝播速度を測定する。せん断波エラストグラフィでは組織の弾性率を定量的に求めることが可能である。エラストグラフィには超音波イメージングや磁気共鳴イメージングが臨床においてよく用いられる [1, 2]。一方で X 線イメージングを利用したエラストグラフィも検討されており、2 次元的に弾性率を算出した例が既に報告されている [3, 4]。X 線は生体組織に対して透過性・直進性が高いことから、組織深部の腫瘍の位置を高い空間分解能で特定できると期待される。

我々は 3 次元的な X 線エラストグラフィを試みた。試料は 0.7wt% のアガロースゲルであり、試料の X 線吸収コントラストを向上させるため、ゲル内部に ZrO_2 粒子が分散させた。試料は直径およそ 10 mm の円筒形をしている。実験のセットアップの模式図を Fig. 1 (a) に示す。管電流 30mA、管電圧 40kV に設定した回転陽極 X 線源 (ultraX18, Rigaku Corp.) とフォトンカウンティングディテクタ (UHSS-500K, Rigaku Corp.) を用いて X 線撮影を行った。ステージの回転数を 0.5 rps として試料に周波数 100 Hz の振動を与えながらフレームレート 10,000 fps で撮影した。振動周期がフレームレートの 100 倍であることから、試料の振動を 100 ステップの位相に分けて撮影することが可能である。また、一つの位相ステップについて、等角度間隔で 200 方向から一周分の投影画像を取得できる。取得された投影画像を用いて、振動の位相がそれぞれ異なる 3 次元再構成像を合計で 100 個得た。再構成後、デノイズされた一つの 3 次元画像を Fig. 1 (b-d) に示す。非剛体レジストレーションによって再構成像間の変位を求め、またせん断波の波動方程式の逆問題を解くことによって弾性率を計算した。

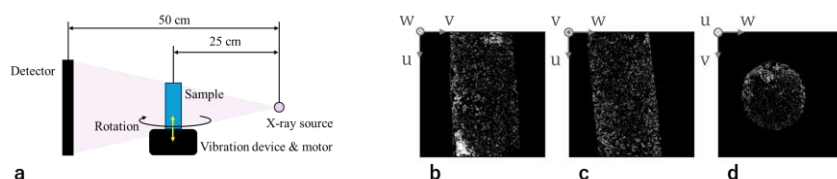


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup (a) and three slices of one reconstructed three-dimensional image (b-d), which are visualized for u-v plane at $w = 250$ (b), u-w plane at $v = 250$ (c), and v-w plane at $u = 250$ (d). Areas with high gray scale values indicate locations of ZrO_2 particles.

謝辞

本研究は、JST CREST (JPMJCR2335), JSPS 科研費 (JP21K15837, JP23K17675) および AMED (JP17hm0102054) による助成を受けた。また高エネルギー加速器研究機構の松垣直宏氏、平木雅彦氏、高富俊和氏に感謝申し上げる。

参考文献

- [1] R. M. Sigrist *et al.*, *Theranostics*, vol. 40, pp. 1303-1329, Dec. 2017.
- [2] K. M. Pepin *et al.*, *Progress in Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy*, vol. 90-91, pp. 32-48, Nov. 2015.
- [3] C. Kamezawa *et al.*, *Applied Physics Express*, vol. 13, 042004, Mar. 2020.
- [4] C. Kamezawa *et al.*, *Scientific Reports*, vol. 11, 24128, Dec. 2021.

Li_xMO₂系 Li イオン電池正極材料における コンプトン散乱を用いた電位測定法の検討

Investigation of potential measurement method using Compton scattering in Li_xMO₂-based Li-ion battery cathode material

群馬大学¹, 北陸先端科学技術大学院大学²

○(M2)天田 洋輔¹, 巩 春侠², 星 和志¹, 鈴木 宏輔¹, 高橋 学¹, 櫻井 浩¹

Gunma Univ.¹, Japan Advanced Institute of Science and Technology.²

○Yosuke Amada¹, Gong Chunxia²,

Kazushi Hoshi¹, Kosuke Suzuki¹, Manabu Takahashi¹, Hiroshi Sakurai¹

E-mail: T231D005@gunma-u.ac.jp

これまでの研究では、Li_xCoO₂ においてコンプトンプロファイル測定により total energy を求めれば電池内の局所的電位を求めることができ、コンプトンプロファイルの積分範囲は有限でも有効であることがわかった。本研究では、Co 以外の材料においてコンプトンプロファイル測定により電位を求め、その積分範囲が有限でも有効であることを確認することを目的とする。

$$-\Delta E = -[E_{\text{Li}x2\text{MO}2} - E_{\text{Li}x1\text{MO}2} - (x2 - x1)E_{\text{Li}}]_{[1]}$$

以上の式より、total energy を計算し電圧を求めることができる。その total energy は Virial 定理を用いて

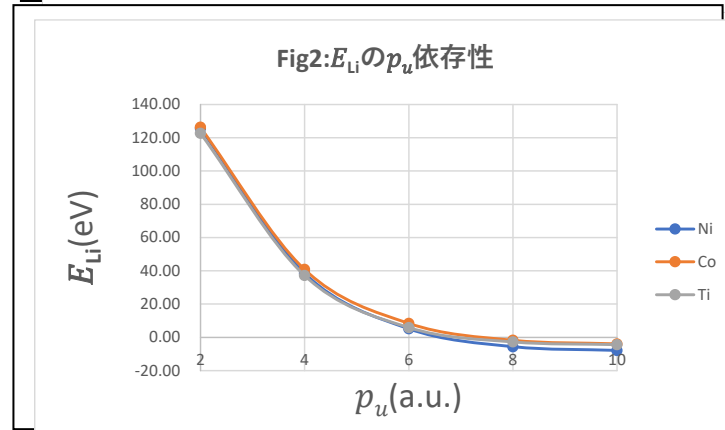
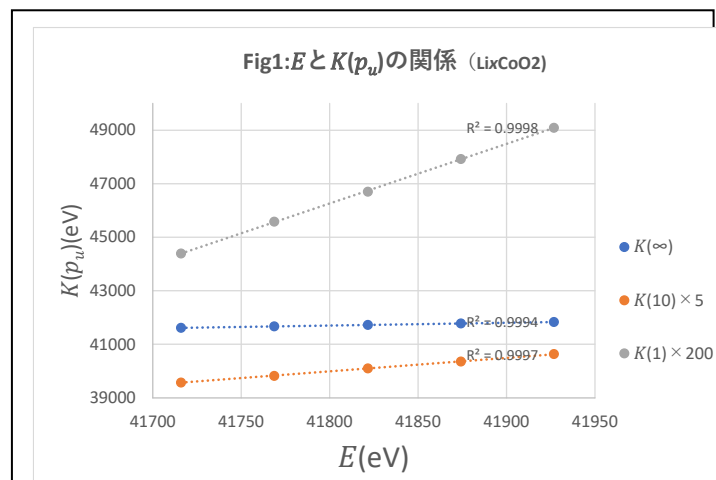
$$K(p_u) = 3 \int_0^{p_u} p^2 J(p) dp \quad [1]$$

以上の式からコンプトンプロファイルより求めることができ、Fig1 より線形関係を示すことが分かった。これにより、total energy を計算し電圧を求めることが

できる。したがって、コンプトンプロファイル測定により total energy を求めれば電池内の局所的電位を求めることができることがわかった。また、M を変えても Co と同様に線形と考え E_{Li} を求めたところ Fig 2 より、M を変えても同様に E_{Li} を求めることができることが分かった。

Ni や Ti などといった新たな材料においてもコンプトンプロファイル測定により total energy を求めれば電池内の局所的電位を求めることができ、コンプトンプロファイルの積分範囲は有限でも有効であることがわかった。

[1]Malcolm J.Cooper et al., X-ray Compton Scattering, Oxford University, 2004.



X 線ライトシート顕微鏡の三次元データの局在解析で達成される 一桁 nm 空間分解能

Single digit nm spatial resolution achieved by STORM analysis on three- dimensional data of X-ray lightsheet microscope

理化学研究所放射光科学研究センター¹ ○香村芳樹¹, Sierra Dean¹, 高野秀和¹, 石川哲也¹

RIKEN SPring-8 Center¹, ○Yoshiki Kohmura¹, Sierra Dean¹, Hidekazu Takano¹,

Tetsuya Ishikawa¹

E-mail: yoshiki.kohmura@riken.jp

原子レベルで制御された形状を有する X 線全反射ミラー[1]を使って、垂直方向幅 65nm 程度の X 線ライトシートが実現され、X 線ライトシート顕微鏡[2]が開発された。生体試料の三次元構造を調べるために、X 線照射で可視発光するシンチレーター微粒子を標識とし導入し、試料走査しながら X 線の照射による発光を観察することで生体の三次元イメージングが実現された[2]。今回、以下の実験を行った。

X 線ライトシート顕微鏡で三次元の超解像を実現するため面内の局在解析法と合わせ奥行き方向の強度分布にガウス分布を仮定したモデルフィッティングを行う三次元局在解析を開発し、シリカ球表面のシンチレーター微粒子分布の三次元計測を行った。微粒子の位置不定性として、標準偏差で 2 nm (奥行き方向)と 7 nm (面内方向)という三次元の高解像度が達成された。

上記のシリカ球の形状計測を実施し、シリカ球の半径が 5845nm で、球面の表面粗さが 90nm 以下と求めた。本顕微鏡と三次元局在解析の組み合わせは、物体の表面形状、表面粗さの測定に、非常に有用であることが分かった。

最後に、三次元の局在解析が有用である試料中の微粒子密度の条件を調査した。X 線ライトシートの幅は 65nm 程度と薄く、断面内でシンチレーションを起こす微粒子は疎で、像の重なりを防ぐことができる。この結果、高精度の微粒子の位置決定が可能であった。これに対し、可視光のライトシート幅は最小で 400nm 程度であり、この幅を模すために、6 層ほどの断面を重ねたデータを作成し局在解析を行った所、検出される粒子数が大幅に減り、像の重なりが生じて、位置決定精度が下がることが分かった。

以上より、X 線ライトシート顕微鏡を用いた三次元局在解析によって、標準偏差で一桁程度の空間解像度を与えることができ、同時に、検出可能な試料内微粒子密度の上限を大幅に上げられることが分かった。

References

- [1] S. Matsuyama, Y. Kohmura, et al., “50-nm-resolution full-field X-ray microscope without chromatic aberration using total-reflection imaging mirrors”, *Sci. Rep.* **7**, 46358 (2015).
- [2] Y. Kohmura, et al., “The new X-ray/visible microscopy MAXWELL technique for fast three-dimensional nanoimaging with isotropic resolution”, *Sci. Rep.* **12**, 9668 (2022).

7 ビーム応用 | 一般セッション(口頭講演): 7.2 電子ビーム応用

[17a-D63-1~6] 7.2 電子ビーム応用

[17a-D63-1]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] Graphene-Insulator-Semiconductor構造電子源中の単層および多層グラフェンでの電子回折を利用した単色性の向上

○小市 崇央^{1,2}、河嶋 祥吾¹、三宅 広士¹、阿保 智¹、若家 富士男¹、長尾 昌善²、村上 勝久² (1.阪大基礎工、2.産総研)

[17a-D63-2]

電界印加された層状絶縁体における入射電子の干渉効果

河嶋 祥吾¹、○小市 崇央^{1,2}、阿保 智¹、若家 富士男¹、長尾 昌善²、村上 勝久² (1.阪大基礎工、2.産総研)

[17a-D63-3]

Graphene/h-BN/Ni-Sapphire構造を有する平面型電子源作製プロセスの開発

○(M2)六川 蓮^{1,3}、鷹尾 祥典¹、山本 将也^{2,3}、根尾 陽一郎²、村田 博雅³、長尾 昌善³、村上 勝久³ (1.横国大、2.静岡大、3.産総研)

[17a-D63-4]

グラフェン/p-Siショットキー接合型電子放出デバイスから放出する電子のエネルギー分析

○村上 勝久¹、村田 博雅¹、長尾 昌善¹ (1.産総研)

[17a-D63-5]

異なるアルカリ金属を用いたInGaNフォトカソードの電子放出特性

○(D)出射 幹也¹、佐藤 大樹²、小泉 淳²、西谷 智博^{2,3}、本田 善央³、天野 浩³ (1.名大院工、2.Photo electron Soul、3.名大IMaSS)

[17a-D63-6]

水熱合成法による深紫外線蛍光体を用いたフィールドエミッションランプの開発

○(M2)岡田 昌大¹、根尾 陽一郎^{1,2}、文 宗鉉^{1,2}、松本 貴裕³ (1.静岡大院工、2.静岡大電研、3.名古屋市立大)

Graphene-Insulator-Semiconductor 構造電子源中の 単層および多層グラフェンでの電子回折を利用した単色性の向上 Improvement of Monochromaticity Using Electron Diffraction at Single- and Multi-Layer Graphene in Graphene-Insulator-Semiconductor-Structured Electron Source

阪大基礎工¹, 産総研², ○小市 崇央^{1,2}, 河嶋 祥吾¹, 三宅 広士¹, 阿保 智¹, 若家 富士男¹,
長尾 昌善², 村上 勝久²

Osaka Univ.¹, AIST², ○Takao Koichi^{1,2}, Shogo Kawashima¹, Hiroshi Miyake¹, Satoshi Abo¹,
Fujio Wakaya¹, Masayoshi Nagao², Katsuhisa Murakami²

E-mail: u264659i@ecs.osaka-u.ac.jp

Graphene-Insulator-Semiconductor (GIS) 構造の電子源は、48.5 %の電子放出効率を達成し [1], タングステン冷陰極のエネルギー幅 0.3 eV [2] より小さい 0.18 eV [3] という単色性を達成している。GIS 構造電子源表面のグラフェンは、金属を蒸着する場合に比べて高い結晶性を持ち、層数を制御して作製することが可能である。また、グラフェンは六角形のハニカム構造を持ち、C 軸配向している。従って、グラフェンからは強い回折波が発生すると考えられる。この回折波のエネルギースペクトルはあるエネルギーに鋭いピークを持つ可能性があるため、本研究では単色性向上の新たな手法として回折波に着目し、数値シミュレーションによる回折波の解析を行った。

数値シミュレーションは3次元の実空間で行った。グラフェンの単位胞を z 方向と垂直に設置し、図 1 に示すように、z 方向に自由電子を進行させ、グラフェンによる入射電子の回折現象の解析を行った。z 方向には複素吸収ポテンシャルを置いて無反射境界とした。グラフェンのポテンシャル $V(\mathbf{r})$ は Quantum Espresso [4], トーマスフェルミ近似を用いることで作成した。初期波束は +z 方向に進むガウス型の波動関数

$$\psi(\mathbf{r}, t = 0) \propto \exp \left\{ ik_0 z - \frac{(z - z_0)^2}{\alpha^2} \right\} \quad (1)$$

とした。ここで、 α はガウス型波束の大きさを表すパラメータ、 $k_0 = \sqrt{2mE_0}/\hbar$ は電子の波数である。この波動関数をシュレディンガー方程式によって時間発展させた。その結果、回折波の透過角度がエネルギーに依存することから、グラフェンをプリズムのように用いて回折波をアパーチャーに通すことで、単色性の高い電子を取り出すことが可能であることが分かった。

最近の進展として、グラフェン層の層数を増やすことで、回折波が強め合う条件を制限出来ることが分かり、これより、回折波をアパーチャーに通すことなく、グラフェン層自体から単色性の高い電子を取り出すことが可能であると分かった。講演会当日は、このような最近の進展も含めて報告する。

本研究の一部は JSPS 科研費 22H01498 24K00954 の助成を受けたものです。

[1] K. Murakami *et al.*, ACS App. Elect. Mat., **2** (2020) 2265. [2] A. Bogner *et al.*, Micron **38** (2007) 390.

[3] T. Igari *et al.*, Phys. Rev. App., **15** (2021) 014044. [4] P. Giannozzi *et al.*, J. Phys. Condens. Matter **21** (2009) 395502.

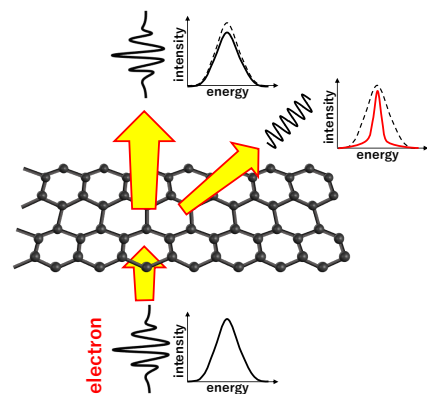


Fig. 1: Schematic drawing of electron diffraction at graphene. The electron wave packet is diffracted into two components, if the energy is higher than 33 eV. One of them travels straight, while the other is diffracted. Highly monochromatic electron beams can be obtained from the diffracted waves.

電界印加された層状絶縁体における入射電子の干渉効果

Interference Effect of Incident Electron in Layered Insulator
with Applied Electric Field阪大基礎工¹, 産総研², 河嶋 祥吾¹, ○小市 崇央^{1,2}, 阿保 智¹, 若家 富士男¹,
長尾 昌善², 村上 勝久²Osaka Univ.¹, AIST², Shogo Kawashima¹, ○Takao Koichi^{1,2}, Satoshi Abo¹, Fujio Wakaya¹,
Masayoshi Nagao², Katsuhisa Murakami²

E-mail: u264659i@ecs.osaka-u.ac.jp

Graphene-Insulator-Semiconductor (GIS) 構造の電子源は、高い電子放出効率と単色性を持つ新世代の電子源として注目されている [1]. GIS 電子源では、絶縁体層として六方晶窒化ホウ素 (*h*-BN) を用いることで 0.7 eV 未満のエネルギー幅を達成している [2]. また、GIS 電子源のグラフェン層を透過する電子のビーム特性が、グラフェン層による回折や多重反射による効果で影響を受けることが、数値シミュレーションによって確認されている [3]. *h*-BN はグラフェンと同様の層状の構造を持っているため、絶縁体層もグラフェン層と同様に、電子ビーム特性に大きな影響を与える可能性がある. GIS 構造電子源の絶縁体層では、数 nm の絶縁体層に 10 V 程度の電圧が印加されており、 10^7 V/cm 程度の電界となっている. つまり、グラフェン層内を移動する電子と異なり、絶縁体層内では、電子は 10^7 V/cm の電界中を移動し、かつ絶縁体層の原子によって散乱されながらグラフェン層まで到達する. tip 先端の強い電界が存在している表面に単原子が吸着している電子源の放出電子ビームの特性についての研究はすでに行われている [4] が、平面電子源の層状の絶縁体層中での、複雑な電子の運動に着目した研究は行われていない. そこで、本研究では絶縁体層での電子散乱に関して、数値シミュレーションを行った.

半導体から絶縁体にトンネル効果によって移動する電子のエネルギーは高々 30 meV 程度であり、波長が ~ 70 Å と、原子に比べて大きいため、シミュレーション領域を大きくする必要があり非常に難しい. そこで本研究ではグラフェンに接する 5 層の *h*-BN のみに着目し、この絶縁体層に数 \sim 数十 eV のエネルギーを持った電子を入射させ、シュレディンガー方程式によって波動関数の時間発展を計算した. また、波動関数をフーリエ変換することで、エネルギー毎の透過率、反射率を求めた. このとき、*h*-BN の単位胞を $x-y$ 平面方向に設置し、 $+z$ 方向を電子の初期進行方向とした. また、電圧 V_{app} による一様な電界を z 方向に印加した. 図 1 に印加電圧 $V_{app} = 10$ V としたときの z 方向に対するポテンシャルエネルギーを示す.

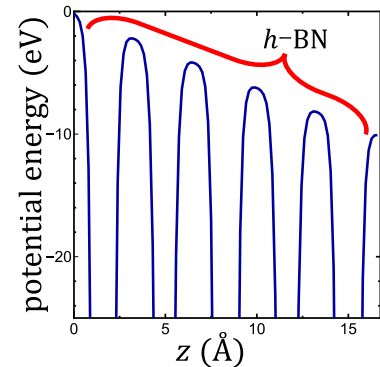


Fig. 1: Potential energy of 5-layer *h*-BN with $V_{app} = 10$ V at a certain (x,y)-position.

シミュレーション結果から、絶縁体層間の干渉によって、あるエネルギー付近で透過率が減少する効果を確認できた. またこの他に、電子が $V_{app}/5$ の電圧によって加速されたときに得るエネルギーの間隔で、透過率の減少が確認された. これは *h*-BN 層内の干渉によって起こされた効果である.

本研究の一部は JSPS 科研費 22H01498 の助成を受けたものです.

参考文献

- [1] K. Murakami *et al.*, ACS App. Elect. Mat., **2** (2020) 2265. [2] T. Igari *et al.*, Phys. Rev. App., **15** (2021) 014044.
[3] 小市崇央 *et al.*, IEICE Technical Report, **123**(297) (2023) 8. [4] V. T. Binh *et al.*, Phys. Rev. Lett., **69** (1992) 2527.

Graphene/h-BN/Ni-Sapphire 構造を有する 平面型電子源作製プロセスの開発

Fabrication Process for Planar-type Electron Emission Devices

Using Graphene/h-BN/Ni-Sapphire Structure

横国大¹, 静岡大², 産総研³ ○(M2)六川 蓮^{1,3}, 鷹尾 祥典¹, 山本 将也^{2,3}, 根尾 陽一郎²,
村田 博雅³, 長尾 昌善³, 村上 勝久³

YNU¹, Shizuoka Univ.², AIST³, °Ren Mutsukawa^{1,2}, Yoshinori Takao¹, Masaya Yamamoto^{2,3},

Yoichiro Neo², Hiromasa Murata³, Masayoshi Nagao³, Katsuhisa Murakami³

E-mail: mutsukawa-ren-cz@ynu.jp

■ 背景と目的

電子源は、宇宙機器のキーデバイスや電気推進における中和器など、宇宙利用において重要な役割を担っている。ホローカソードのような従来の電子源は推進剤を消費し、サイズが小さくなるにつれて性能が急激に低下する。これまでに推進剤非消費の電子源として Graphene/SiO₂/n-Si 構造を有する平面型グラフェン電子源の利用を検討してきた[1]。平面型グラフェン電子源は、30%以上の高い電子放出効率、10–20 V の低印加電圧で 1–100 mA/cm² の高電子電流密度を提供可能である。しかし、デバイスの動作原理から、電子放出中に絶縁層である SiO₂ に 10MV/cm² の高電界が印可される。高電界により加速されたホットエレクトロンの非弾性散乱による絶縁膜の絶縁破壊がデバイスの寿命を決める。そのため、デバイスの長寿命化には非弾性散乱断面積が小さく、絶縁破壊耐性の高い絶縁膜材料の選定が重要となる。

上記を解決するため、絶縁層として SiO₂ の代わりに六方晶窒化ホウ素 (h-BN) を検討した。h-BN は軽い元素で構成されているため非弾性散乱によるエネルギー損失が小さく、グラフェンとの構造的な類似性からグラフェンとの親和性が高い絶縁材料である。本研究では、Ni を金属触媒として h-BN を成膜した Graphene/h-BN/Ni-sapphire 構造を有する平面型電子源の開発を行っている。

■ 実験手法

本研究では、実績のある c 面サファイア基板上に Ni (111) 成膜を試みた。Ni 膜は、500°C の熱スパッタリングによって 500 nm の厚さで成膜した。この Ni 膜を Ar+H₂ 雰囲気中、

1100°C で 30 分間アニールした。このプロセスにより、サファイア基板上に Ni (111) がエピタキシャル成長した。電子放出エリアは tetraethyl orthosilicate (TEOS) を原料として用いた 200 nm の SiO₂ フィールド酸化物層によって規定した。Ni 上の h-BN は、誘導結合プラズマ化学気相成長法 (ICP-CVD) によって合成された。Graphene 電極も ICP-CVD によって h-BN 上に堆積させた。図 1 に、これらのプロセスによって形成されたデバイス構造を示す。

■ 結果と考察

上記プロセスで作製したグラフェン/h-BN/Ni-sapphire 構造を有する平面型電子源の電子放出特性を測定したところ、印加電圧が 25V 付近から電子放出が始まり、最大放出電子密度 1.1 A/cm²、最大電子放出効率 4.4% が得られた。このとき、h-BN の膜厚が 10–15 nm であり、より薄膜化することによって、高い電子放出密度が期待できる。また、h-BN 成膜領域の作製技術の確立により更なる電子放出効率の向上が可能であると考えられる。現在、そのプロセスの最適化に取り組んでいる。

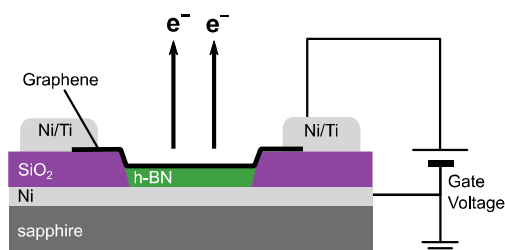


図 1 Graphene/h-BN/Ni-Sapphire 構造を有する平面型電子源の概略図

【参考文献】

[1] K. Murakami et al., Applied Physics Letters, Vol. 114, p.213501, 2019.

グラフェン/p-Si ショットキー接合型電子放出デバイスから 放出する電子のエネルギー分析

Energy Analysis of electrons emitted from graphene/p-Si Schottky junction electron emission devices

産総研 °村上 勝久, 村田 博雅, 長尾 昌善

AIST, °Katsuhisa Murakami, Hiromasa Murata, Masayoshi Nagao

E-mail: murakami.k@aist.go.jp

我々の研究グループでは、Metal/Insulator/Semiconductor 積層構造の平面型電子放出デバイスで実用化に向けて課題となっている、電子加速層である絶縁層の劣化による放出電流減少を解決するために、電子加速層に半導体空乏層を利用したグラフェン/p-Si ショットキー接合型電子放出デバイスの開発を推進している。これまでに、デバイスの動作を実証し[1]、更に放出電流密度 15 mA/cm²、電流変動率 0.9%（標準偏差）の安定性で、160 時間以上の連続動作を達成した[2]。

過去に報告されている半導体空乏層を用いた平面型電子放出デバイスの動作原理では、半導体空乏層に印可された強電界により、コンダクションバンド中の少数キャリアが半導体空乏層で雪崩増倍を起こし、そのホットエレクトロンの一部が真空中に放出されると考えられてきた[3]。このようなデバイスの動作原理を調査するためには、放出電子のエネルギー分布を調べるのが重要である。本研究では、グラフェン/p-Si ショットキー接合型電子放出デバイスの動作原理を調べることを目的として、デバイスから放出する電子のエネルギースペクトルを、静電半球型エネルギー分析装置を用いて分析した。

エネルギースペクトルの形状は高エネルギー側にテールを引く特徴的な形状であった。これは Graphene/h-BN/Si 接合型デバイスと同様のスペクトル形状であり、下部 Si 基板中の電子の密度分布を反映した形状であった[4]。エネルギーピークはフェルミ準位から約 1.25eV 高い準位に位置し、エネルギー半値幅は最小 0.18 eV であり、タングステン冷陰極のエネルギー半値幅 0.3eV を凌駕する単色性であった。これらの結果は、グラフェン/p-Si ショットキー接合型平面電子源では p-Si 基板のコンダクションバンド中の少数キャリアがほぼ散乱することなく空乏層で加速されグラフェンを貫通して放出していることを示唆しており、従来考えられていた雪崩増倍により生じた電子ではない可能性があることが分かった。また、グラフェン/p-Si ショットキー接合型電子放出デバイスは、長寿命、高エネルギー単色性、低真空動作、マルチ電子ビーム可能な次世代電子光源として高いポテンシャルを有することが分かった。

参考文献

- [1] 村上勝久 他, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-A501-12 (2023).
- [2] 村上勝久 他, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 25a-12M-11 (2024).
- [3] G. G. P. van Gorkom, et al, *J. Vac. Sci. Technol. B* **4**, 108 (1986).
- [4] T. Igari, et al., *Phys. Rev. Applied* **15**, 014044 (2021).

異なるアルカリ金属を用いた InGaN フォトカソードの電子放出特性

Comparative studies of electron emission characterization of InGaN photocathodes with different alkali metal

名大院工¹, (株) Photo electron Soul², 名大 IMASS³

°(D)出射 幹也¹, 佐藤 大樹², 小泉 淳², 西谷 智博^{2,3}, 本田 善央³, 天野 浩³

Nagoya Univ.¹, Photo electron Soul Inc.², IMASS Nagoya Univ.³

°(D)Mikiya Idei¹, Daiki Sato², Atsushi Koizumi², Tomohiro Nishitani^{2,3}, Yoshio Honda³ and Hiroshi Amano³

E-mail: idei.mikiya.j4@s.mail.nagoya-u.ac.jp

【研究背景】半導体フォトカソードは、p 型半導体表面にアルカリ金属を蒸着することで、負の電子親和力(NEA)状態の表面を形成し、半導体のバンドギャップエネルギー以上の光照射によって、真空中に電子を放出する。半導体フォトカソード電子源では、これまでに mA オーダーの大電流[1]や室温エネルギーレベルの単色性[2]、パルス電子ビーム[3]やマルチ電子ビーム[4]の生成が示されている。これらの特徴に加えて、高輝度化による電子顕微鏡への応用が進んでいる[5]。NEA 表面のアルカリ金属には、電気陰性度の低い Cs がよく用いられ、Cs と O₂ を交互供給することで、Cs のみの供給よりも高い量子効率(QE)と耐久性を得る Yo-Yo 法が行われている。しかしながら、NEA 表面は残留ガス吸着やイオンバックボンバードメントにより劣化するため、その耐久性の向上が課題となっている。高耐久化に関しては、複数のアルカリ金属を用いたマルチアルカリが検討されている[6]。そこで本研究では、従来の GaAs よりも高耐久性の高い InGaN フォトカソードにおける NEA 表面のさらなる高耐久化を目的として、InGaN フォトカソード上に形成した Cs による NEA 表面と、これまでに研究報告のない Cs 以外のアルカリ金属を用いて InGaN フォトカソード上に形成した表面の電子放出特性を比較した。

【実験】有機金属気相成長法により、(0001)サファイア基板上に InGaN フォトカソードを作製した。作製したフォトカソードは、酸洗浄後にフォトカソード評価装置に入れ、超高真空中での加熱洗浄により表面を清浄化した。その後、Cs 又は Na と O₂ を交互供給することで、表面の活性化を行った。その際、励起波長 404 nm のレーザーを電子放出側から照射し、加速電圧-100 V における放出電流を 100 k Ω のシャント抵抗により測定して QE の時間変化を測定した。

【結果】図 1 に Cs を用いた NEA 表面活性化における QE の時間変化を示す。QE は、Cs と O₂ の供給を繰り返すことで増大した。これは Yo-Yo 法を用いた NEA 活性化における典型的な結果である。図 2 に Na を用いた表面活性化における QE の時間変化を示す。QE は、最初の Na 供給で最大値を示し、Na と O₂ の供給を繰り返すことで減少した。また、到達 QE は、Cs の場合と比較して 1 桁程度低かった。このことから、Na を用いた Yo-Yo 法では、仕事関数が十分に低下しないために、QE の増大が生じないことが分かった。

【謝辞】本研究は、科研費(24H00319)の助成を受けたものです。

【参考文献】[1] J. Grames *et al.*, in Proceedings of 2005 Particle Accelerator Conference (2005), p. 2875. [2] D. A. Orlov *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A **532**, 418 (2004). [3] D. Sato *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B **40**, 064204 (2022). [4] D. Sato *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B **39**, 062209 (2021). [5] T. Nishitani, *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. B **40**, 064203 (2022). [6] A. V. Lyashenko *et al.*, JINST **4** P07005 (2009).

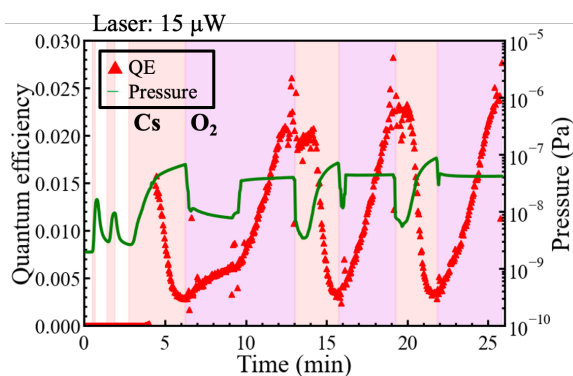


Fig. 1: QE during NEA activation using Cs.

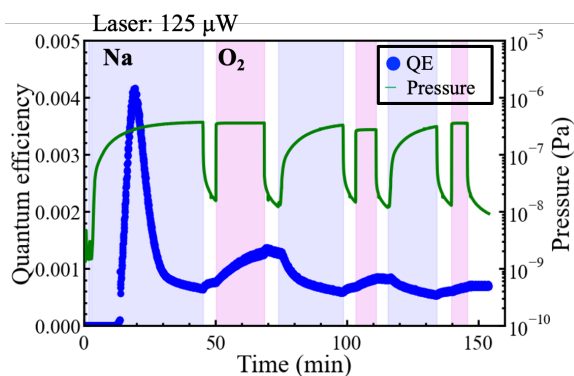


Fig. 2: QE during NEA activation using Na.

水熱合成法による深紫外線蛍光体を用いたフィールドエミッションランプの開発

Development of FEL with deep-ultraviolet phosphors made from hydrothermal synthesis

静岡大・院工¹, 静岡大・電研², 名古屋市立大³

○(M2)岡田 昌大¹, 根尾 陽一郎^{1,2}, 文 宗鉉^{1,2}, 松本 貴裕³

¹ Grad. Sch. of Eng. Shizuoka Univ. ² RIE Shizuoka Univ. ³ Nagoya City Univ.

○Masahiro.Okada^{1,2}, Yoichiro.Neo^{1,2}, Moon.Jonghyun^{1,2}, Takahiro.Matsumoto³

E-mail : okada.masahiro.19@shizuoka.ac.jp

【研究背景】 本研究の目的は、Far-UVC 光源としての電界放射型ランプ (FEL) の開発である[1].

波長 200-230nm の Far-UVC は、人体に非侵入である一方でウィルスの不活化に効果がある特徴をもつ[2]. 従来の UVC 殺菌では、DNA の損傷を伴い皮膚がんや白内障の危険性があり、人がいる環境下では使用する事が出来ない. 2019 年以降の Covid-19 パンデミックにより、効果的な感染拡大の予防策が求められてきた. FEL は紫外線蛍光体を加速電子線で励起発光させるものであり、発光波長は蛍光体の電子状態に、発光輝度は放出電流量と加速電圧に依存する. これまで電子源には大電流が放射可能且つ、安価で取り扱いが容易である炭素系電子源を用い、固相反応で合成した MgAl_2O_4 により、波長 229nm の深紫外線を確認した. 本報告では、更なる高輝度、短波長化のため、水熱合成法に注目した. これにより結晶成長の大きさ、形状の制御が可能となる. 実験的に求めた理想的な不純物濃度、発光波長について報告する.

【実験】 蛍光体は、 $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (0.03mol) と任意の量の $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ を NaOH (0.1M) 溶液に溶解させ、30 分攪拌した. 180℃の温度条件で 18 時間の水熱合成を行い、得られた沈殿物をろ過し、大気中で 90℃、4 時間の乾燥により、水酸化物の粉末を得た. 脱水のため、550℃、6 時間の焼成を、更に大気雰囲気中で 1000℃、12 時間の再焼成を行った. 以下、Al の添加量は Mg に対するモル比でのパーセントで示す.

【結果】 図 1 より、純粋な MgO では、F 中心とされる約 250nm の発光が確認できる. 0.1% の Al 不純物を添加し、脱水における 550℃の焼成に加え、再度 1000℃での焼成をした場合、目的の Fra-UVC 波長域である 222nm の発光中心を確認した. これにより、固相反応による MgAl_2O_4 蛍光体からの短波長化を実現した. 当日は、再焼成の温度、不純物濃度変化による発光中心の短波長化についても議論する.

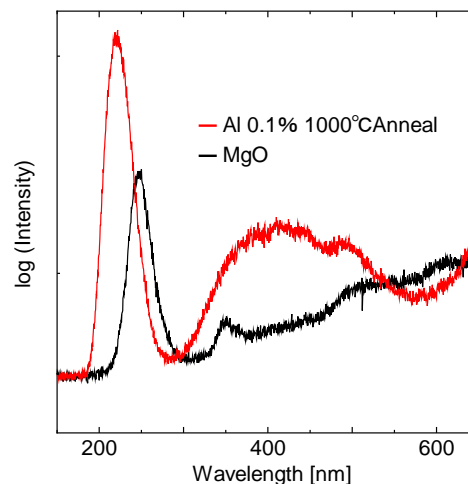


図 1 MgO と Al を 0.1% 加えて 1000℃で焼成した CL スペクトル

[1] Yoko Aida, et al. UVC disinfects SARS-CoV-2 by induction of viral genome damage without apparent effects on viral morphology and proteins, Scientific Reports volume 11, Article number : 13804 (2021)

[2] Hiroki Kitagawa, et al., Effectiveness of 222-nm ultraviolet light on disinfecting SARS-CoV-2 surface contamination (2020)

7 ビーム応用 | 一般セッション(口頭講演): 7.2 電子ビーム応用

[17p-D63-1~16] 7.2 電子ビーム応用

[17p-D63-1]

ADF STEM法を用いた結晶表面の精密原子間距離計測技術の構築

○小林 俊介¹、小井沼 巖¹、大江 耕介¹、仲山 啓¹、穴田 智史¹、桑原 彰秀¹ (1.JFCC)

[17p-D63-2]

円形絞りをを用いた電子ビーム空間干渉性の定量計測

○山崎 順^{1,2}、畑中 修平¹ (1.阪大電顕セ、2.名大未来研)

[17p-D63-3]

電子ビームのWigner関数再構成と軸上輝度式の導出

○(D)畑中 修平^{1,2}、山崎 順^{1,3} (1.阪大電顕セ、2.阪大院工、3.名大未来研)

[17p-D63-4]

走査電子顕微鏡の電子ビームサイズ推定用試料の提案

戸倉 大智¹、曾雌 侑輝¹、○早田 康成¹ (1.筑波大学)

[17p-D63-5]

レーザー励起光電子顕微鏡による電子線レジストの高速潜像イメージング

○藤原 弘和^{1,2,3}、Bareille Cédric¹、大川 万里生¹、谷内 敏之^{2,3} (1.東大物性研、2.東大院新領域、3.東大MIRC)

[17p-D63-6]

超高速時間分解SEMを用いた光伝導アンテナの局所電位の可視化

○(M1)岡本 ニコライ 岳¹、嵐田 雄介¹、川崎 康平¹、羽田 真毅¹、吉田 昭二¹、鄭 サムエル¹、赤田 圭史^{1,2}、藤田 淳一¹ (1.筑波大数理、2.JASRI)

[17p-D63-7]

SOIピクセル検出器を用いた単電子検出による電子線干渉実験

○石田 裕一¹、石田 高史^{1,2}、桑原 真人^{1,2}、新井 康夫³、齋藤 晃^{1,2} (1.名大院工、2.名大未来研、3.KEK)

[17p-D63-8]

SOI技術を用いた高速撮影可能なダイレクト電子検出器の開発

○石田 高史^{1,2}、石田 裕一²、桑原 真人^{1,2}、新井 康夫³、齋藤 晃^{1,2} (1.名大未来研、2.名大院工、3.KEK)

[17p-D63-9]

球面電子源のクーロン効果シミュレーション

姫田 幸毅¹、○早田 康成¹ (1.筑波大学)

[17p-D63-10]

フィールド・エミッタ・アレイにおけるチップの軸ズレが電子ビームに与える影響

○村田 英一¹、川崎 祐輔¹、鈴木 悠斗¹、田中 崇之¹、六田 英治¹ (1.名城大理工)

[17p-D63-11]

TiNコーティングを施したボルケーノ構造フィールドエミッタアレイのその場観察および放出電流の評価

○川崎 祐輔¹、村田 英一¹、村田 博雅²、長尾 昌善² (1.名城大理工、2.産総研)

[17p-D63-12]

Siエミッタ上へのTiNスパッタリング成膜条件の調査

○村田 博雅¹、村上 勝久¹、長尾 昌善¹ (1.産総研)

[17p-D63-13]

CeB₆単結晶表面の熱酸化に伴う化学状態変化

○鶴田 諒平¹、柳 俊輔¹、荒井 元哉¹、大場 宏祐¹、佐々木 正洋¹、山田 洋一¹ (1.筑波大数理)

[17p-D63-14]

表面酸化六ホウ化セリウム電界放出電子源の放出電流評価

○柳 俊輔¹、鶴田 諒平¹、荒井 元哉¹、大場 宏祐¹、佐々木 正洋¹、山田 洋一¹ (1.筑波大数理)

[17p-D63-15]

電界誘起酸素エッチングによって先鋭化されたW電界放出陰極のエネルギー分布

○志摩 惇紀¹、岩田 達夫¹、永井 滋一¹ (1.三重大院工)

[17p-D63-16]

Ga-In液体金属の気化熱によるジュール熱補償電界放射陰極

○(M1)佐藤 宏樹^{1,2}、根尾 陽一郎^{1,2}、文 宗紘^{1,2}、小田 陸人^{1,2} (1.静岡大院工、2.静岡大電研)

ADF STEM 法を用いた結晶表面の精密原子間距離計測技術の構築

Measurement of atomic distances on crystal surfaces using ADF imaging in scanning transmission electron microscopy

ファインセラミックスセンター¹

○小林俊介¹, 小井沼巖¹, 大江耕介¹, 仲山啓¹, 穴田智史¹, 桑原彰秀¹

Japan Fine Ceramics Center.¹, ° Shunsuke Kobayashi¹, Gen Koinuma¹, Kousuke Ooe¹,

Kei Nakayama¹, Satoshi Anada¹, Akihide Kuwabara¹

E-mail: s_kobayashi@jfcc.or.jp

【緒言】

多くの機能性材料において局所領域の僅かな原子配列と物性が密接に関係し、表面や界面などの局所領域での原子配列変化の計測において走査透過電子顕微鏡法 (STEM) は極めて有効な手法である。本研究では、単純な金属であるプラチナ(Pt)表面をモデルサンプルとして STEM 法における表面での原子変位計測精度の検証を実施した。Pt の(111)表面は理論計算モデルから僅か数 pm ほど原子間距離が膨張することが予測されている。この局所領域における数 pm の原子変位計測を実現させるため、像取得条件などを最適化や像シミュレーションを通してサブピコメートルスケールでの精度を保証することで、これまで実空間では計測が困難であった Pt 表面の構造緩和を明らかにすることに成功した。

【方法】

Pt プレート TEM 試料化し、球面収差補正付き走査透過電子顕微鏡装置を用いて Pt (111) 表面の ADF STEM 像を取得した。得られた ADF STEM 像から輝点中心位置を求め表面の Pt-Pt 原子間距離変化の計測を実施した。

【結果・考察】

原子位置座標を精密に計測するため、画像サイズおよび画像取得時間などを最適化した。そして、取得した数十枚の各画像のドリフト補正を行い、S/N 比の高い積算画像を構築した。この画像構築プロセスを最適化することによりサブピコメートルを保証する原子位置評価が可能となった。

Fig. 1(a)に構築したプロセスにより Pt(111) 表面から取得した ADF STEM 像を示す。観察された各輝点は Pt の原子カラム位置に対応する。二次元ガウシアンフィッティングにより、Pt 原子カラムの中心座標を高精度に抽出し、ピコメートルスケールで Pt-Pt 原子間距離を計測した結果を Fig. 1(b)に示す。内部と比較して Pt(111) 表面では Pt-Pt 原子間距離が僅か数 pm 程度膨張していることを実空間で計測することに成功した。

構築したサブピコメートルを保証する原子位置計測技術は表面やヘテロ界面など局所領域での僅かな原子変位をより高精度に評価できること意味しており、STEM 法を用いた局所領域計測の応用分野の拡大が期待される。

【謝辞】

本研究は JSPS 科研費(21K18196, 22H04914, 23H00241) および NEDO 事業 (JPNP20003), MEXT 事業 (JPMXP1122683430) の助成を受け、ATLA 安全保障技術研究推進制度 (JPJ004596)により導入した装置を利用して行われたものです。また、データの一部は大森雄貴研究員の協力を頂いたものです。

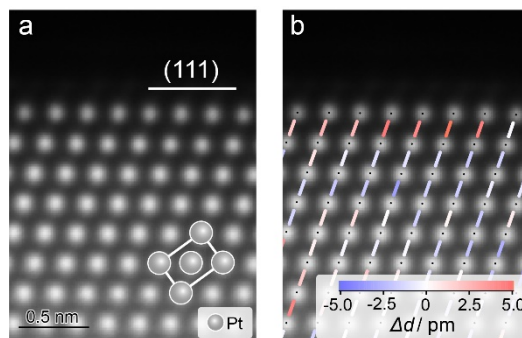


Fig. 1. (a) ADF STEM image of Pt (111) surface viewed from [1-10] direction. (b) Color map of Pt-Pt interatomic distances measured from (a) Pt (111) surface.

円形絞りを用いた電子ビーム空間干渉性の定量計測

Quantitative measurement of spatial coherence of electron beams using aperture

○阪大電顕セ¹, 名大未来研², 阪大院工³ ○山崎 順^{1,2}, 畑中 修平^{1,3}

RC-UHVEM, Osaka Univ.¹, IMASS, Nagoya Univ.², Grad. Sch. Eng., Osaka Univ.³,

○Jun Yamasaki^{1,2}, Shuhei Hatanaka^{1,3}

E-mail: yamasaki@uhvem.osaka-u.ac.jp

高分解能 TEM 像や電子線ホログラフィー、回折位相イメージングなどの電子線干渉を利用した観察手法はビーム干渉性の影響を大きく受けるが、これを精度よく計測する手法は限定的である。我々はこれまでに、透過電子顕微鏡内での制限視野絞りによる Airy 回折図形を解析することによって、電界放出型電子銃からのビームの空間干渉性を定量的に計測する手法を開発した[1]。本研究では熱電子銃からのビームの計測に応用するための手法拡張を行った[2]。

回折図形形成に寄与するレンズ（集束レンズ、中間レンズ等）の幾何収差と色収差、絞り内のビーム強度分布と光軸位置、ディテクターMTF やビーム部分干渉性に起因する回折図形ボケ量を考慮したフィッティング計算によって、Fig.1(a),(b)に示すように実測の Airy 回折図形強度を高い精度で再現可能である。このフィッティング結果から Airy 回折図形の点拡がり関数が正確に求まるため、複数の電子ビーム径での解析結果に基づいた成分分離により、ビームの空間干渉長を定量的に計測することが可能となる[2]。この手法を熱電子ビームに適用する際の障害は、電界放出型銃に比べて2桁ほど小さな空間干渉長と、経時変化などによって生じるエミッションパターンの非対称性であり、それぞれに対する実験時の対策と事後の補正方法を開発した[2]。Schottky 型 FEG、cold 型 FEG、LaB₆ 熱電子銃による電子ビームの空間干渉長を比較した結果を Fig. 1(c)に示す[3]。いずれのデータもビーム径に比例して増加する空間干渉長が正しく計測されている。

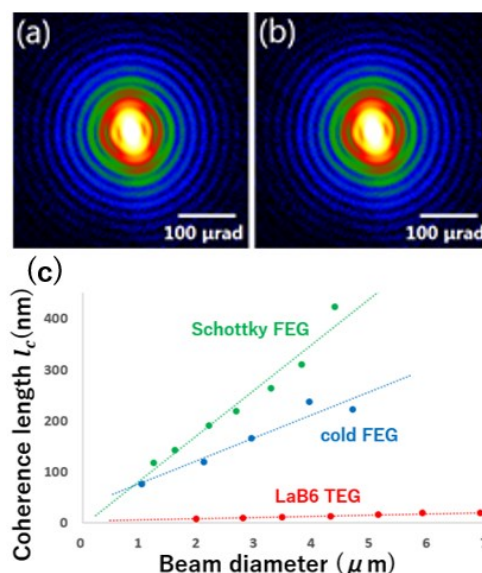


Fig 1. (a) Measured and (b) calculated Airy diffraction patterns of a selector aperture. (c) The spatial coherence length depending on the beam diameter.

[1] J. Yamasaki, et al., Microscopy 67, 1 (2018)

[2] S. Hatanaka and J. Yamasaki, Journal of the Optical Society of America A 38, 1893 (2021)

[3] S. Hatanaka and J. Yamasaki, to be submitted. (2024)

電子ビームの Wigner 関数再構成と軸上輝度式の導出

Reconstruction of Wigner function of electron beams and derivation of axial brightness formula

阪大電顕セ¹, 阪大院工², 名大未来研³

○畑中 修平^{1,2}, 山崎 順^{1,3}

RC-UHVEM, Osaka Univ.¹, Grad. Sch. Eng., Osaka Univ.², IMaSS, Nagoya Univ.³

○Shuhei Hatanaka^{1,2}, Jun Yamasaki^{1,3}

E-mail: hatanaka@uhvem.osaka-u.ac.jp

電子顕微鏡の電子源として、熱電子銃および電界放出電子銃 (FEG) が広く利用されており、近年では光電効果で電子ビームを生成するフォトカソードもパルス電子顕微鏡で使用されるようになってきている。電子源の違いが顕著に現れるパラメータはビーム干渉性であり、我々はこれらの電子銃を備えた透過電子顕微鏡 (TEM) での干渉性測定を通じて、電子源の特性比較を目指している。これまでに FEG と LaB₆ 熱電子銃についてビーム干渉性の定量評価を達成した [1, 2] が、これらの結果は TEM の照射レンズ系に依存しており、異なる装置間での直接比較が困難である。レンズ系に依存しない比較を実現するため、干渉性測定に基づいた輝度の算出に取り組んだ。

我々の開発した干渉性測定法では、TEM 内の制限視野絞りからの Fraunhofer 回折である Airy pattern の強度分布を解析することにより、絞り内のビームの強度分布と位相分布、および試料面でのコヒーレンス関数をすべて求めることが可能である [1, 2]。これらの情報から位相空間の擬確率密度関数として知られる Wigner 関数

$$W(r, q) = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint_{-\infty}^{\infty} d^2\mu e^{-iq\mu} \langle r + \frac{\mu}{2} | \hat{\rho} | r - \frac{\mu}{2} \rangle \quad (1)$$

の再構成に取り組んだ。ここで、 $\hat{\rho}$, r , q はそれぞれ密度演算子、実空間ベクトルおよび逆空間ベクトルを表す。式1の被積分関数である $\langle r + \frac{\mu}{2} | \hat{\rho} | r - \frac{\mu}{2} \rangle$ は、波動振幅の相関で定義される相互可干渉度関数 $\Gamma(r + \frac{\mu}{2}, r - \frac{\mu}{2})$ に等しく、干渉性測定の結果に基づいて計算可能である。図1は、Schottky FEG について再構成した Wigner 関数の一例である。Wigner 関数の原点値に関する考察から、空間干渉長と軸上電流密度を用いて軸上輝度を計算する式を導出することに成功した [3]。提案手法により、cold FEG, Schottky FEG, および LaB₆ 熱電子銃の軸上輝度を決定した。講演では、軸上輝度の導出方法の詳細と電子源による比較結果を報告する。

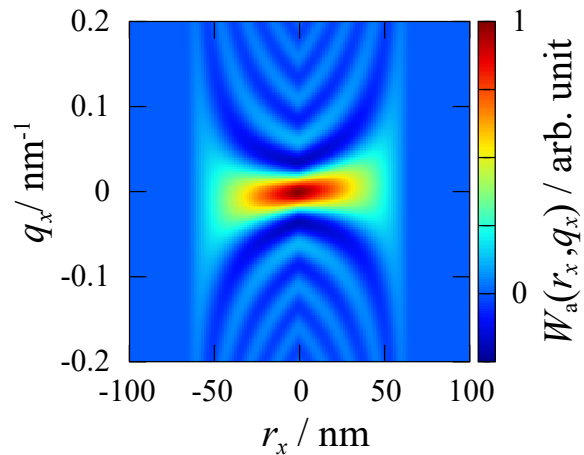


図 1: 再構成した Wigner 関数

[1] J. Yamasaki, *et al.*, *Microscopy* 67, 1 (2018).

[2] S. Hatanaka and J. Yamasaki, *Journal of the Optical Society of America A* 38, 1893 (2021).

[3] S. Hatanaka and J. Yamasaki, to be published.

走査電子顕微鏡の電子ビームサイズ推定用試料の提案

Proposal of a Sample for Electron Beam Size Estimation in Scanning Electron Microscopy

筑波大学数理物質科学研究群 戸倉 大智, 曾雌 侑輝, 早田 康成

University of Tsukuba, Daichi Tokura, Yuki Soshi, Yasunari Sohda

E-mail: sohda.yasunari.gf@u.tsukuba.ac.jp

研究背景

走査電子顕微鏡の基本的な特性の1つに試料上での電子ビームサイズが挙げられる。ここでは電子ビームサイズを像シャープネス (DR 値) [1,2]で代用することとし、DR 値の評価に適した試料を提案する。試料は面内の均一性が高いことが重視して半導体作製プロセスを活用することとした。

試料作製方法

Figure1 に試料作製プロセスを示す。試料はシリコンの異方性ウェットエッチングを用いて作製する。(110)面のシリコン基板上に電子ビームリソグラフィにより酸化膜の微細パターンを形成する。これをマスクとして、シリコンの異方性ウェットエッチングにより垂直な(111)面を側面とする 100nm 以下の微細なラインアンドスペースを形成する。作製したシリコン試料の SEM 画像を Figure 2(b)に示す。(a)は従来から走査電子顕微鏡の良し悪しを判断する試料として用いられている Au 蒸着試料の SEM 画像である。

実験結果

それぞれの SEM 画像の多数のパターンエッジにおいて DR 値を求めた結果が Figure3 である。横軸は Au 蒸着試料ではパターンエッジの方向の角度であり、Si 試料ではパターンの縦方向の位置座標である。

両者ともに DR 値に角度や座標のあからさな依存性は見られない。しかし、ばらつきは Au 蒸着粒子の方がかなり大きい。特に、DR 値の大きな値のばらつきが見られる。これは Figure 2(a)に見られる Au 粒子の大きさや隣接粒子間の距離のばらつきに起因するものと考えられる。

提案したシリコン試料は DR 値の SEM 画像面内ばらつきが小さく、電子ビームサイズを推定するための試料として優れている可能性がある。

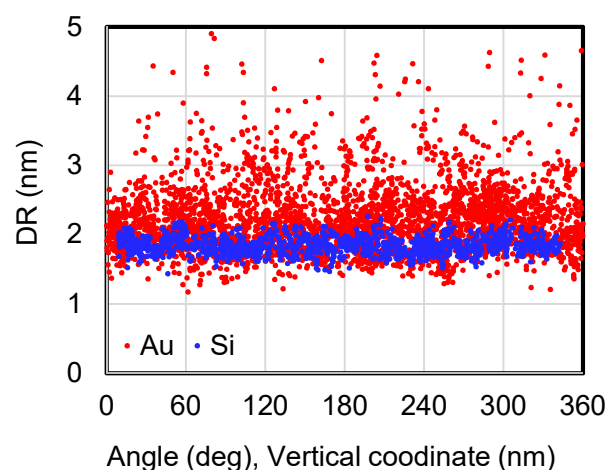


Fig.3 Uniformity of DR values

[1] 佐藤貢, 精密工学会誌, Vol.79 No.11 (2013) 1009

[2] K. Kumagai, Microsc. Microanal. 22 (Suppl 3) 2016

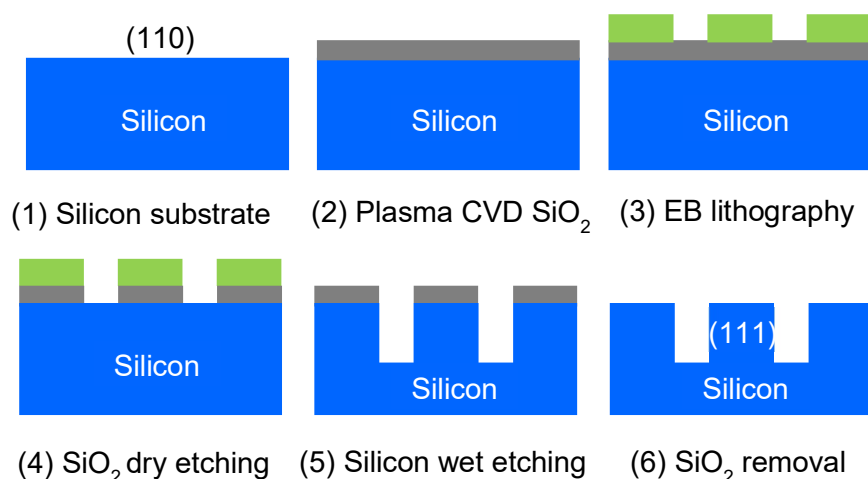


Fig.1 Silicon sample fabrication flow

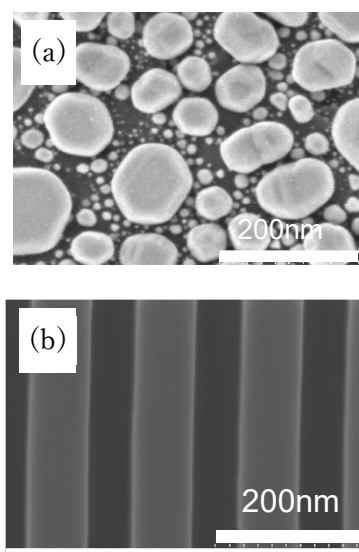


Fig.2. Sample images

(a) Au evaporation (b) Si edge

レーザー励起光電子顕微鏡による電子線レジストの高速潜像イメージング
High speed latent-pattern imaging for an electron beam resist by laser-based
photoemission electron microscopy

東大物性研¹, 東大院新領域², 東大 MIRC³

○藤原弘和^{1,2,3}, Cédric Bareille¹, 大川万里生¹, 谷内敏之^{2,3}

The Univ. of Tokyo., [○]Hirokazu Fujiwara, Cédric Bareille, Mario Okawa, and Toshiyuki Taniuchi

E-mail: hfujiwara@issp.u-tokyo.ac.jp

潜像とは、リソグラフィプロセスにおいて、露光によって形成された化学的な描画パターンである[1]。光学顕微鏡で可視化できない微細な潜像は、現像までの工程を経なければ走査型電子顕微鏡等によって検査することができない。もし、微細な潜像を可視化できれば、現像までの工程をスキップして描画パターンを検査可能となり、リソグラフィ不良検査のスループットを向上できる。これまでに、赤外原子間力顕微鏡 (IR-AFM) による潜像観察の報告があるが[1]、スループットに課題があり、潜像観察に広く用いられるには至っていない。

レーザー励起光電子顕微鏡 (laser-PEEM) は、フェルミ準位近傍に始状態を持つ光電子の実空間像を拡大結像することで顕微像を得る手法である[2]。その測定原理ゆえ、電子状態の不均一性を敏感に可視化できる。近年、連続波レーザーと収差補正器を組み合わせることで空間電荷効果を抑制し、2.6 nm の空間分解能で高速に像取得が可能となった[3]。本研究では、ライン・アンド・スペース (LS) 潜像パターンが形成された電子線レジストを laser-PEEM で観察し、潜像イメージングの概念実証および AFM との比較を行った。

Fig. 1(a)に、ZEP520A に加速電圧 75 kV、ドーズ量 94 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ で描画した LS 潜像パターン

(線幅 500 nm、1:1) の PEEM 像 (データ取得時間: 5 秒) を示す。像の縦方向に直線的な暗線のコントラストが可視化されていることがわかる。この LS パターンのピッチは 1 μm で、設計ピッチとよく対応する。Fig. 1(b)に、PEEM 像と同等の空間分解能で観察した AFM 像を示す。電子線照射によるシュリンクに起因した凹構造として潜像が可視化されることを確認した。この AFM 像取得には 410 秒の時間を要したことから、PEEM は AFM の約 80 倍以上のスループットを実現できることが示された。本成果は「潜像検査」という新たな半導体検査技術の実現可能性を示すものである。講演では、PEEM 像に見られたコントラスト形成メカニズムをより詳細に議論する。

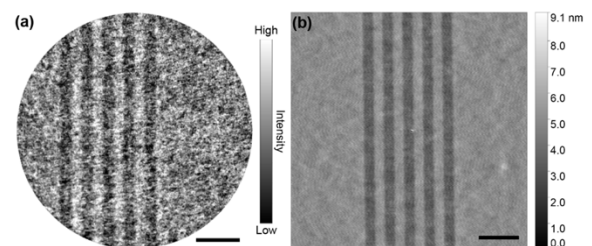


Fig. 1 (a) PEEM image of a latent LS pattern drawn on ZEP520A. (b) AFM image of a latent LS pattern. The scale bars indicate 2 μm .

References: [1] M. van Es *et al.*, MNE **19**, 100181 (2023).
[2] H. Fujiwara *et al.*, Appl. Phys. Lett. **123**, 173501 (2023).
[3] T. Taniuchi *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **86**, 023701 (2015).

超高速時間分解 SEM を用いた光伝導アンテナの局所電位の可視化

Visualization of Ultrafast Change of Local Potential on a Photoconductive Antenna by Scanning Electron Microscopy

筑波大数理¹, JASRI² (M1) 岡本 ニコライ¹, 嵐田 雄介¹, 川崎 康平¹, 羽田 真毅¹, 吉田 昭二¹,

鄭 サムエル¹, 赤田 圭史^{1,2}, 藤田 淳一¹

Univ. of Tsukuba¹, JASRI² Nikolai Gaku Okamoto¹, Yusuke Arashida¹, Kohei Kawasaki¹, Masaki, Hada¹, Shoji Yoshida¹, Samuel Jeong¹, Keishi Akada^{1,2}, Jun-ichi Fujita¹

E-mail: arashida.yusuke.kb@u.tsukuba.ac.jp

現代の電子デバイスの微細化・高速化に伴い、これらデバイスのマクロかつ高速な動作を直接的に評価・観測可能する手法が求められる。2次電子量を測定する走査型電子顕微鏡(SEM)は試料表面の電位に敏感な測定が可能である。我々は SEM とフェムト秒レーザーを組み合わせた超高速時間分解走査電子顕微鏡(SUEM)を開発している [1]。光励起を用いたポンププローブ法の導入によって、デバイス電極の動的な高速電位変化が計測可能な装置を製作した[2]。

光源にパルス幅 190 fs、中心波長 1030 nm、繰返し 200 kHz の Yb:KGW レーザー増幅器を用いた。この基本波の第 4 次高調波を電子銃直下に設置した穴あきミラーで鉛直上方に反射しタングステン電子銃に集光し、発生した光電子パルスをプローブとして用いた。ポンプには予め基本波の一部を分割したビームに光学遅延を付与したのちに第二次高調波を発生させ試料に照射する。試料には自作の金電極と Undoped-GaAs 基板で構成される光伝導アンテナを用い、電極間に定常電圧が印加した。Fig. 1 (a)の SEM 像のように光照射の 50 ps 前は電位差を反映して陽極に比べ陰極からの二次電子量が多く観察される。光照射の 50 ps 後では GaAs に光キャリアが励起にされたことで Fig. 1 (b)のように電位差が解消される。このときの陰極電位の時間変化を Fig. 2 に示すと、43 ps の速さで電位差が解消し、500 ps 以降に再充電が始める様子が分かった。このように我々は SUEM を使うことで電子デバイスの局所電位変化を 23 GHz の帯域で非接触で画像化することが可能であることを示した。

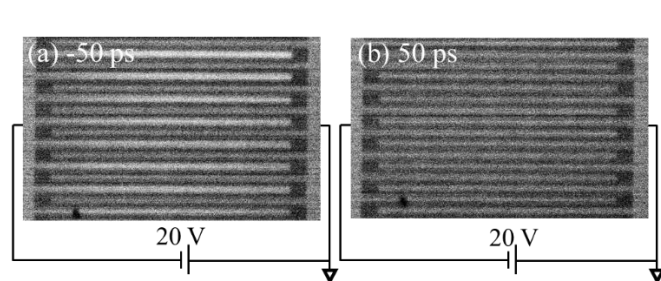


Fig. 1 SEM image of sample
(a) Before pump (b) After pump

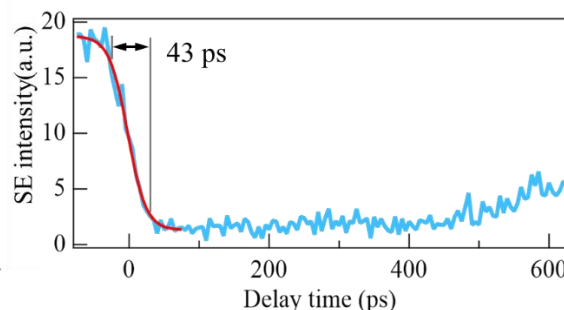


Fig. 2 SE intensity on cathodes

[1] 川崎康平, 第 83 回応物秋季講演会, 21a-C306-3

[2] Y. Arashida *et al.*, *ACS Photonics*, 2024. doi.org/10.1021/acsphotonics.3c01532.

謝辞：本研究は、防衛装備庁安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けて実施した。

SOI ピクセル検出器を用いた単電子検出による電子線干渉実験

Interference experiment using single-electron detection with an SOI pixel detector

名大院工¹, 名大未来研², KEK³

○(M1)石田 裕一¹, 石田 高史^{1,2}, 桑原 真人^{1,2}, 新井 康夫³, 齋藤 晃^{1,2}

Grad. Sch. of Eng., Nagoya Univ.¹, IMaSS, Nagoya Univ.², KEK³

°Yuichi Ishida¹, Takafumi Ishida^{1,2}, Makoto Kuwahara^{1,2}, Yasuo Arai³, Koh Saitoh^{1,2}

E-mail: ishida.yuichi.n6@s.mail.nagoya-u.ac.jp

Silicon-on-insulator (SOI)ピクセル検出器は高エネルギー加速器研究機構(KEK)で開発されたイメージセンサであり、X線をはじめとした様々な量子ビーム検出[1]に用いられている。我々の研究グループでは、SOIピクセル検出器を透過型電子顕微鏡(TEM)の電子線検出器として応用[2]を進めてきた。SOIピクセル検出器は高い検出効率を持つため、入射電子1つ1つを記録することができる。本発表では、低線量下において電子線の干渉縞を積分型SOIピクセル検出器であるINTPIX4で撮影し、電子の二重性(波動性と粒子性)を示す電子線干渉実験を行った結果について報告する。

図1に実験方法の模式図を示す。本実験ではTEMに搭載された電子線バイプリズムにより、波面を検出器上で重ね合わせることで干渉縞を生成した。本研究で用いたINTPIX4はピクセル数とピクセルサイズ、センサ厚さがそれぞれ 512×832 ピクセル、 $17 \mu\text{m} \times 17 \mu\text{m}$ 、 $500 \mu\text{m}$ である。

図2に干渉縞をINTPIX4で撮影した結果を示す。電子の加速電圧は120 kVで、低線量下で撮影した画像を500枚積算することで得られた。この結果はINTPIX4を用いて電子の二重性を示したことを意味する。本発表では、単電子検出性能を定量的に評価した結果、及び電子数が増えるにつれて干渉縞が現れる様子を動画で示す。

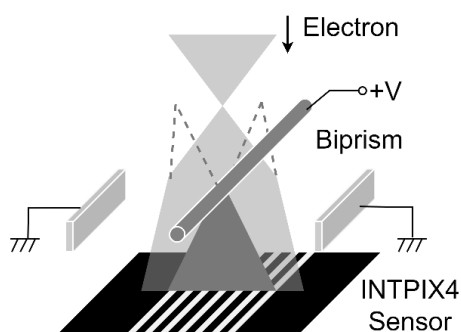


Fig. 1 Schematic diagram of an interference experiment with an electron beam biprism.

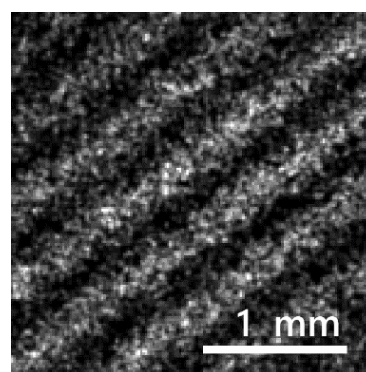


Fig. 2 Hologram taken with INTPIX4. The scale bar represents the size on the detector plane.

[1] Y. Arai, Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 1002A1 (2018).

[2] T. Ishida et al., Microscopy **70**, 321-325 (2021).

SOI 技術を用いた高速撮影可能なダイレクト電子検出器の開発

Development of high-speed recordable direct electron detectors using SOI technology

名大未来研¹, 名大院工², KEK³○石田 高史^{1,2}, 石田裕一², 桑原 真人^{1,2}, 新井康夫³, 齋藤晃^{1,2}IMaSS, Nagoya Univ.¹, Grad. Sch. of Eng., Nagoya Univ.², KEK³°Takafumi Ishida^{1,2}, Yuichi Ishida², Makoto Kuwahara^{1,2}, Yasuo Arai³, Koh Saitoh^{1,2}

E-mail: ishida.takafumi.b5@f.mail.nagoya-u.ac.jp

透過電子顕微鏡(TEM)用のイメージセンサーはその読み出し速度に制限があるため像を連続で記録できるフレーム周期がサブミリ秒程度である。この制限を超えたフレーム周期を実現しマイクロ秒からナノ秒の高速現象を可視化するために、本研究では Silicon-on-insulator (SOI)技術を用いたモノリシック半導体検出器である SOI ピクセル検出器[1]をベースにセンサーチップ内の各ピクセルにマルチアナログメモリを搭載した新規 SOI ピクセル検出器を開発[2]した。我々はこの新規 SOI ピクセル検出器を Silicon-on-insulator for Time-Resolved Imaging in Electron Microscopy とし、そこから頭文字をとり STRIEM と名付けて開発を進めている。その試作 1 号機を STRIEM1 と呼称している。STRIEM1 は有効面積が $1.4 \times 1.4 \text{ mm}^2$ であり、ピクセルサイズ $50 \times 50 \text{ }\mu\text{m}^2$ 、 28×28 ピクセルをもつ。さらに、1 ピクセルに 16 個のアナログメモリを搭載しており、サブマイクロ秒のフレーム周期で 16 枚の像を高速に記録できる。本発表では新規 SOI ピクセル検出器 STRIEM1 の詳細および本検出器によりサブマイクロ秒の高速現象を撮影した結果について報告[2]する。

性能評価のために STRIEM1 を加速電圧 30 kV で動作する時間分解透過電子顕微鏡のカメラチャンバーに搭載した。イメージセンサーとして動作するかを調べるために STRIEM1 をもちいて TEM 像を撮影した。ここで観察試料は集束イオン加工装置(FIB)により作製された SOI の文字のスリットをもつモリブデン箔(図 1(a))を用いた。さらにパルス電子線を STRIEM1 により撮影することで、サブマイクロ秒のフレーム周期での高速撮影の実証実験を行った。図 1(b)に STRIEM1 で撮影したモリブデンスリットの TEM 像を示す。電子線が透過するスリット部分である SOI の文字が明瞭に観察できおり、STRIEM1 が電子直接検出型のイメージセンサーとして動作していることがわかる。またパルス幅が 1.8 マイクロ秒のパルス電子線を STRIEM1 によりフレーム周期 900ns で 16 枚の像を撮影し、サブマイクロ秒での像取得が可能であることを実証した。[2]

発表当日は現在開発を進めているピクセルサイズを縮小させることでピクセル数を増加させた STRIEM2 の開発状況についても報告する予定である。

[1] Y. Arai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 57, 1002A1, 2018.

[2] T. Ishida et al., *Microscopy*, dfac029, 2024.

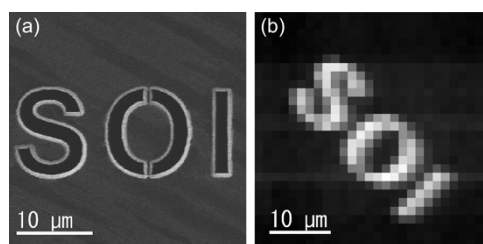


Figure 1. Microscope images of the slit. (a) A SIM image with the FIB. (b) A TEM image with STRIEM1. (reproduced from T. Ishida et al., *Microscopy*, dfac029, 2024)

球面電子源のクーロン効果シミュレーション

Simulation of Coulomb Effect in Spherical Electron Sources

筑波大学数理物質科学研究群 姫田 幸毅, °早田康成

University of Tsukuba, Koki Himeda, °Yasunari Sohda

E-mail: sohda.yasunari.gf@u.tsukuba.ac.jp

研究背景

走査電子顕微鏡に用いられる電子源の基本的な性能は換算輝度とエネルギー分散で代表される。今後の走査電子顕微鏡の撮像高速化や画像高 SN 化のためには電子源の大電流化が必要となり、その際にはクーロン効果による換算輝度の低下やエネルギー分散の増大が課題となってくる。ここでは仮想光源径が小さく高換算輝度が期待できる球面電子源を対象として^[1]、クーロン効果が電子源の特性に及ぼす影響をシミュレーションにより検討した。

計算方法と結果

Figure1 に計算モデルを示す。計算には MEBS 社のソフトウェア「SOURCE」を用いた^[2]。引き出し電極により電子源から電子を放出させ、引き出し電極の後段で 30keV に加速した。電子軌道の評価面を電子源から 30mm 先に設定して、評価面での電子の位置、速度とエネルギーのデータから電子源の特性を求めた。

Figure 2 に評価結果を示す。0.1, 0.3, 0.5 μm の 3 つの曲率半径の電子源で計算を行い、換算輝度は引き出し電圧により変化させた。引き出し電圧を高くするに従い、換算輝度 (B') とエネルギー分散 (ΔE) が増大するが、換算輝度には飽和する傾向が見られた。飽和する換算輝度は曲率半径により異なっている。

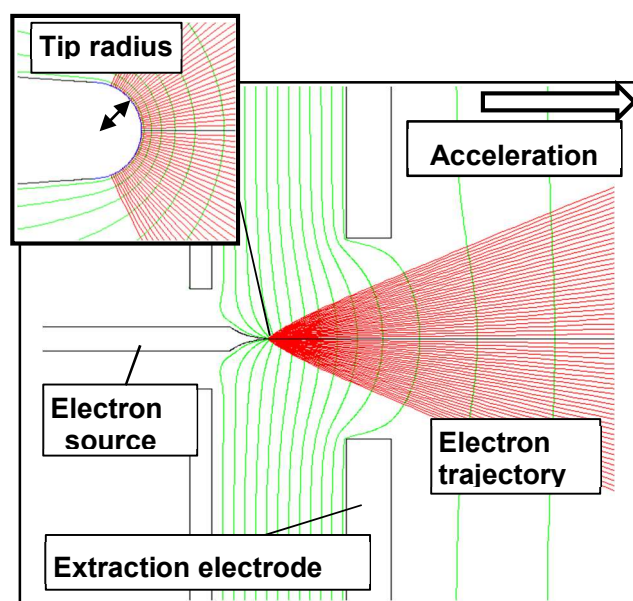


Fig.1 Simulation layout for electron source

また、換算輝度の低い領域では曲率半径の小さい電子源が有利であり、換算輝度が高い領域では曲率半径の大きな電子源が有利である。これらの結果として、求める電子源特性に応じて最適な曲率半径が存在することが明らかとなった。

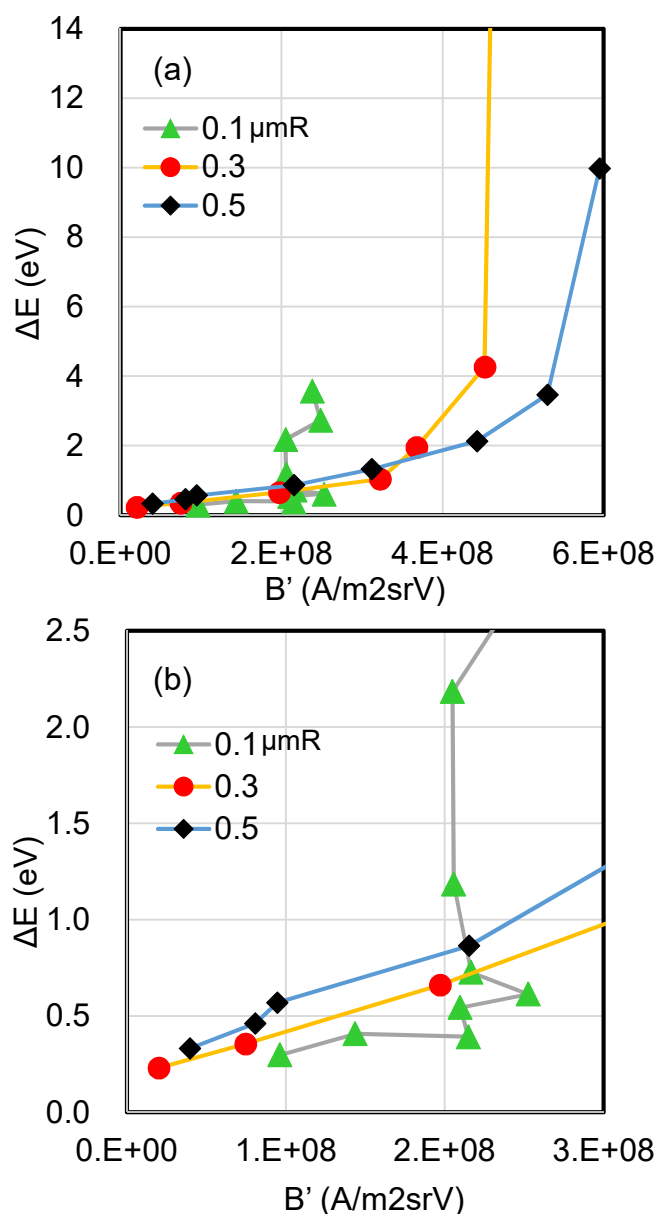


Fig.2 (a) Dependence of electron source characteristics on tip radius and (b) Partial magnified view

[1] S. Matsunaga, AIP Advances 9, 065001 (2019).

[2] J. Rouse, NIM A645 (2011) 310–315

フィールド・エミッタ・アレイにおける チップの軸ズレが電子ビームに与える影響

Influence of a misaligned tip in field emitter array on electron beam

名城大理工 [○]村田 英一, 川崎 祐輔, 鈴木 悠斗, 田中 崇之, 六田 英治

Meijo Univ., [○]H. Murata, Y. Kawasaki, Y. Suzuki, T. Tanaka, E. Rokuta

E-mail: hkmurata@meijo-u.ac.jp

1. はじめに

フィールド・エミッタ・アレイ (FEA) は、フィールド・エミッタを多数集積したもので、次世代の電子源として期待されている。しかし、その利用には問題点も多く、もっとも大きな問題は、個々のエミッタの放出電流値の不均一性である。その原因の1つとしてエミッタの回転対称性からのズレが考えられる。数値計算において、2次元対称から一般3次元の計算となると、計算負荷の観点から困難となるため、これまで、ズレが及ぼす影響についてほとんど解明されないままとなっている。そこで、本研究では、一般3次元の境界電荷法[1]を用いて、FEAの回転対称からのズレの影響について電子軌道解析を行ったので報告する。

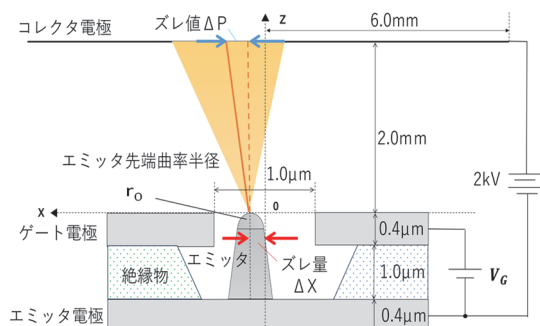


Fig. 1. Schematics of misaligned FEA.

2. 数値実験の方法

今回、FEAの電子軌道解析を行うにあたり図1のような電極形状とした。エミッタの先端曲率半径 $r_0 = 5 \text{ nm}$, 10 nm , 20 nm とし、エミッタに回転対称軸からのズレ量 ΔX を与え、コレクタ電極での電子軌道のズレ値 ΔP を計算する。電極の表面分割数は、今回十分に計算精度が得られる程度の 20,232 (= エミッタ 3,600 + エミッタ電極 2,880 + ゲート電極 12,312 + コレクタ電極 1,440) とした。

3. 結果およびまとめ

図2に $r_0 = 20 \text{ nm}$ での ΔX と ΔP の関係、図3に $r_0 = 5, 10, 20 \text{ nm}$ のエミッタ先端からの ΔX と放出電流量の変化の様子を示す。図2より、

ΔX が大きくなるにつれて電子軌道への影響が大きくなり、エミッタのズレ量 ΔX に対して、エミッタより 2 mm 離れているコレクタ電極における電子ビームのズレ量 ΔP は、その約 1.5 倍となることが分かった。ただ、コレクタ電極までの距離を考慮すると、ほぼ真っ直ぐ飛んでいくと言ってもよい。これに対して放出電流値は、図3より、 $r_0 = 5 \text{ nm}$ の場合で $0.4 \mu\text{m}$ ずれると 1 桁程度大きくなり、激しく電子放出すると考えられる。 $0.2 \mu\text{m}$ のズレでは、電流値は 1.5 倍以内に収まっており、これらのことから FEA の作製において、ゲート孔の直径に対するエミッタのズレは、 $r_0 = 5 \text{ nm}$ の場合で 20% 以内の精度で作製することが望ましいと言える。

[1] H. Murata et al., Proc. SPIE **4510** (2001) 107.

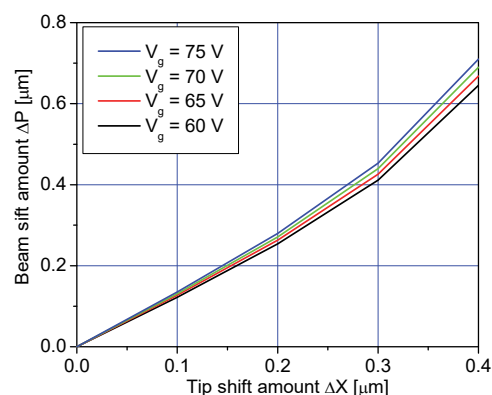


Fig. 2. Beam sift amount as a function of tip shift amount

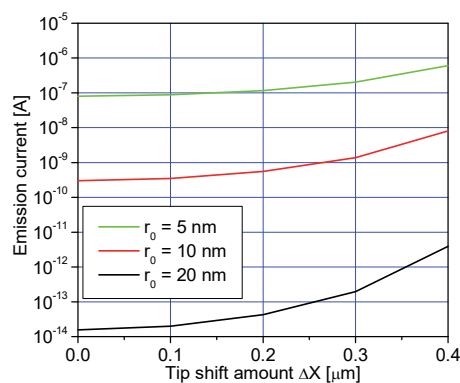


Fig. 3. Emission current as a function of tip shift amount

TiN コーティングを施したボルケーノ構造フィールドエミッタアレイの その場観察および放出電流の評価

In situ observation and individual tip evaluation of volcano-structured
field emitter array with TiN coating

名城大学¹, 産業技術総合研究所² ○川崎 祐輔¹, 村田 英一¹, 村田 博雅², 長尾 昌善²

Meijo Univ.¹, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology²,

○Yusuke Kawasaki¹, Hidekazu Murata¹, Hiromasa Murata², Masayoshi Nagao²

E-mail: 243427012@ccmailg.meijo-u.ac.jp

反応性スパッタを用いて Si エミッタに TiN コーティングを施したボルケーノ構造フィールドエミッタアレイ（以下 FEA）は、次世代の大電流真空デバイスとして期待されている[1]。今回は、エージング（long time DC drive）により、その TiN コーティングされた FEA の各 tip の放出電流の均一性がどのように変化するのかについて、観察および計測を行ったので報告する。

評価に用いた FEA は、TiN コーティング・ボルケーノ構造 Si-FEA $10 \times 10 = 100$ tips である。この FEA を図 1 に示すようなマルチエミッタ評価装置[2]の「光電子放出モード（PEEM）」＋「電界電子放出モード（FEEM）」＋「ファラデーカップ」により、各チップの動作状況を確認する。真空準備室内（ 10^{-7} Pa）にてコンディショニング（初期電圧掃引）後、同準備室でエージングを 3 時間固定でゲート電圧 V_g を 50、60 V の順に行う。エージング毎に、トランスファーロードを使用して、大気に晒すことなく FEA を真空準備室と試料観察室（ 10^{-7} Pa）間で移動させる。観察室での PEEM+FEEM 観察では、MCP スクリーン手前にファラデーカップを配置することで、観察対象の個々の tip を選択して、そのエミッション電流を計測できる。ファラデーカップで計測できる電流値は、装置内のアパーチャ（絞り）を通過したものであるため、実際の電流値の $1/50 \sim 1/600$ 程度となり、相対的な値となるが、直後に真空準備室で全体のエミッション電流値を計測することで、各 tip の実際のエミッション電流値を推定できる。図 2 は、それぞれ、エージング前（同図(a)）と後（同図(b)）の FEEM 像を示す。FEEM 像より、エージング後、 $V_g = 50$ V において tip 動作率が向上し、均一化していることが分かる。また、TiN コーティングされた FEA は、 $V_g = 60$ V において、動作率 100 % を達成している。エージング前は、図 2 中の赤丸で囲まれた 10 tips の平均の放出電流およびそのばらつきは、 $0.294 (\pm 0.378) \mu\text{A}$ （平均値（ \pm 標準偏差））であったが、 $V_g = 50, 60$ V エージング後では、それぞれ $0.372 (\pm 0.353) \mu\text{A}$ 、 $0.312 (\pm 0.305) \mu\text{A}$ となり、エージングにより、平均の放出電流の増加傾向と均一化が見られた。

[1] H. Murata, K. Murakami, M. Nagao, J. Vac. Sci. Technol. B **42**, 013203 (2024).

[2] H. Murata et al., e-J. Surf. Sci. Nanotech. **8**, 266 (2010).

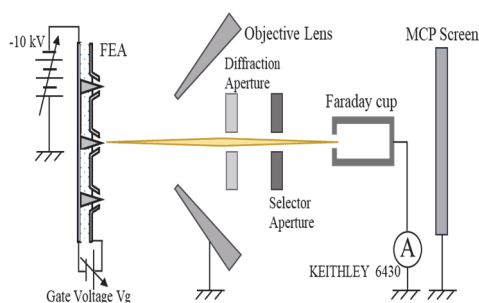


Fig. 1. Schematics of FEA and electron optical instrument of multi emitters

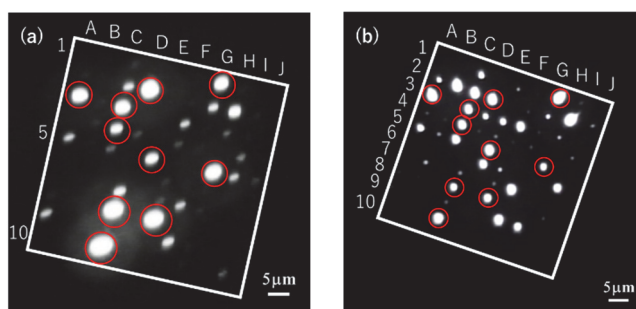


Fig. 2. FEEM images at $V_g = 50$ V, before aging (a) and after 50 and 60 V aging (b).

Si エミッタ上への TiN スパッタリング成膜条件の調査

Investigation of sputtering condition for TiN coating on Si emitter

産業技術総合研究所, °村田 博雅, 村上 勝久, 長尾 昌善

AIST, °Hiromasa Murata, Katsuhisa Murakami, Masayoshi Nagao

E-mail: murata.hiromasa@aist.go.jp

【はじめに】 超高感度・高い耐放射線性を有するイメージセンサーの実現に向け、ボルケーノ構造フィールドエミッタアレイ(FEA)を開発してきたが[1]、エックス線源や超高周波管などのデバイス応用に向けては更なる大電流での動作が求められる。我々はこれまでの研究で、Si コーン上に TiN をコーティングした FEA を作製し、約 1000 tip の FEA から 8 mA の大電流での動作を実証した[2]。そこで、今回、TiN のスパッタリング成膜条件が電子放出特性に与える影響を調査した。

【実験方法】 Si 基板の上にドット状にパターニングした SiO_2 を形成し、これをマスクとして反応性イオンエッチングにより Si コーンを作製した。その後、Ti ターゲットと Ar/ N_2 ガスを用いた反応性スパッタリングにより TiN コーティング層を形成した。このとき、Ar/ N_2 ガス流量は 20/1、20/2、20/3、20/4、20/5、0/20 sccm とした。 SiO_2 層および Nb 層をプラズマ CVD およびスパッタリングにより成膜した後、レジストのエッチバック法を用いてゲート電極を開口し、最後に BHF により SiO_2 を除去してエミッタ先端を開口した (Fig. 1)。

TiN の組成や不純物については、Si 基板の上に成膜したものをを用いて XPS により評価した。また、約 1000 tip を集積した FEA について、エミッタを接地し、ゲートに電圧を印加することで電子を放出させ、1 kV に印加したアノード電極で放出電子を回収することで電子放出特性を評価した。

【実験結果】 XPS による分析の結果、TiN 薄膜中には Ti と N 以外に、不純物として酸素が混入することが明らかとなった。成膜時の N_2 ガス流量の増加に伴って、TiN の組成が 1:1 に近づき、また、TiN 膜中の酸素濃度は減少する傾向がみられた。そこで、TiN の組成が 1:1 に近い Ar/ N_2 = 20/3、20/5、0/20 sccm の 3 条件について、Si コーン上に TiN コーティングを施し、FEA の電流電圧特性を評価した (Fig. 2)。動作電圧は TiN の成膜条件により変化し、スパッタリング成膜時の N_2 ガス流量の増加に伴って動作電圧が減少することが判った。

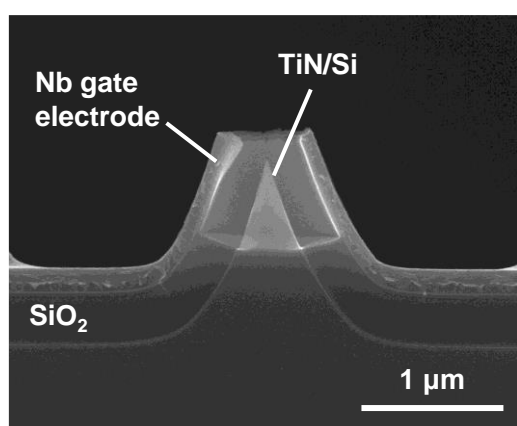


Fig. 1. SEM image of TiN/Si-FEA.

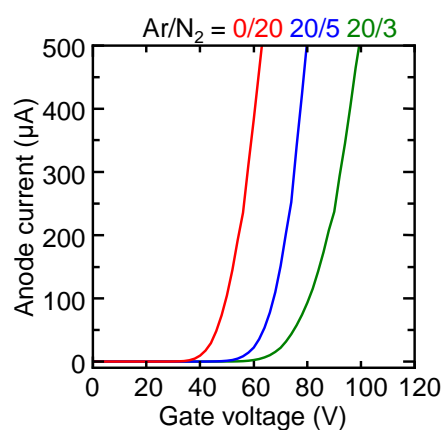


Fig. 2. I-V characteristics of TiN/Si-FEA.

【謝辞】 本研究においてご支援を賜りました株式会社 島津製作所に心より感謝申し上げます。

[1] M. Nagao, Y. Gotoh, Y. Neo, H. Mimura, J. Vac. Sci. Technol. B 34, 02G108 (2016).

[2] H. Murata, K. Murakami, M. Nagao, J. Vac. Sci. Technol. B 42, 013203 (2024).

CeB₆ 単結晶表面の熱酸化に伴う化学状態変化

Chemical Changes on the Surface of CeB₆ Single Crystal by Thermal Oxidation

筑波大数理¹ °鶴田 諒平¹, 柳 俊輔¹, 荒井 元哉¹, 大場 宏祐¹, 佐々木 正洋¹, 山田 洋一¹

Univ. Tsukuba¹, °Ryohei Tsuruta¹, Shunsuke Yanagi¹,

Motoya Arai¹, Kosuke Oba¹, Masahiro Sasaki¹, Yoichi Yamada¹

E-mail: tsuruta.ryohei.gm@u.tsukuba.ac.jp

[背景] 六ホウ化セリウム(CeB₆)は低い仕事関数や、フェルミ準位近傍に 4f 軌道を持つことなどから、次世代電界放出電子源材料として注目されている。しかし、CeB₆は低い仕事関数により酸素等との反応性が高く、安定した電界放出電子源としての利用が困難である。我々はこれまでに加熱により清浄化した CeB₆ の仕事関数が酸素暴露により敏感に増大することを報告した[1]。この仕事関数の増大は 1 L の酸素暴露で飽和したため、表面安定化が期待されているが、電界電子放出電子源として安定利用することは未だ困難であった[2]。本研究では、清浄 CeB₆ 表面の熱酸化により、安定した表面の作製を目指し、その化学状態を XPS により調査した。

[実験] CeB₆ 単結晶(310)表面を超高真空中において、1400°Cに加熱し表面清浄化を行った。この試料を 850°Cに加熱し、1×10⁻⁶ Torr の酸素雰囲気中で 100 L の酸素を暴露することで CeB₆ の表面熱酸化を行った。この清浄化表面、熱酸化表面をそれぞれ KEK PF13B における放射光光電子分光実験によって電子状態を測定した。

[結果・考察] Fig.1 に CeB₆ 単結晶の清浄面、1 L 酸素暴露面、熱酸化面の XPS スペクトルを示す。Ce3d 軌道(a)は清浄面では単一のピークであったのに対して、酸化セリウムに由来する Ce⁴⁺の軌道が酸化に伴い現れ、熱酸化面ではこのピークが明瞭に現れた。また、B1s 軌道(b)においても熱酸化によって酸化ボロンに由来するピークが 191eV 付近に現れる。すなわち CeB₆ の熱酸化において Ce, B いずれの元素も酸化の影響を受けている。また、仕事関数はそれぞれ 2.63 eV, 4.02 eV, 3.26 eV であり、熱酸化面では酸素暴露面よりも低い仕事関数となった。講演ではピーク強度変化や酸化割合を検討し表面における化学状態について報告する。

[1] 鶴田、他、第 71 回応用物理学会春期学術講演会、25a-12M-4 (2024)

[2] 柳、他、第 71 回応用物理学会春期学術講演会、25a-12M-5 (2024)

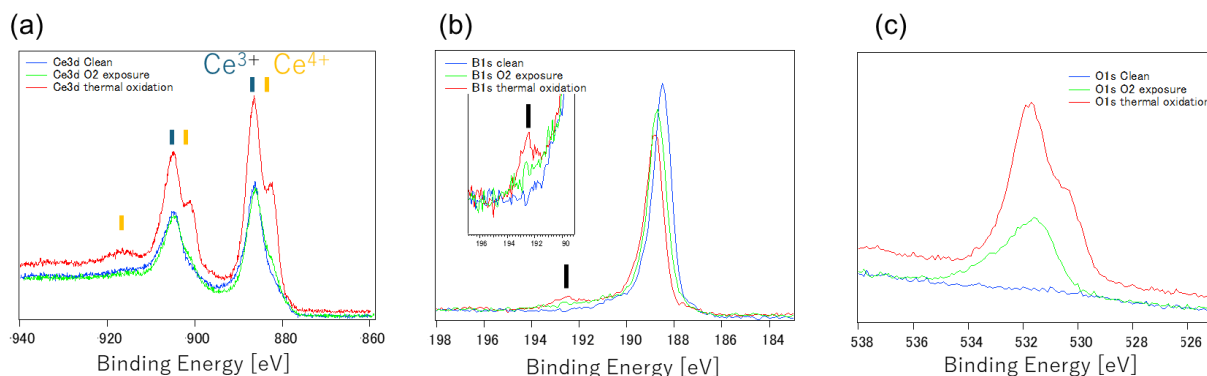


Fig.1. XPS spectra of CeB₆ after cleaning, oxygen exposure (1 L), and thermal oxidation (100 L, 850°C)

(a)Ce3d (b)B1s (c) O1s

表面酸化六ホウ化セリウム電界放出電子源の放出電流評価

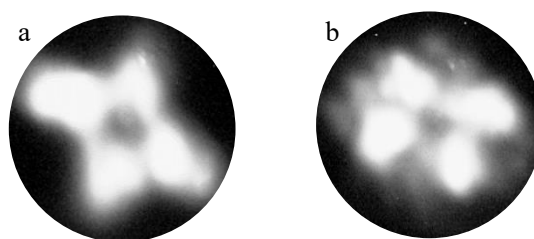
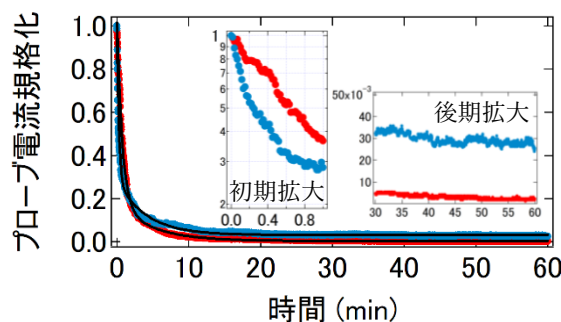
Evaluation of Emission Current from
Surface Oxidized Cerium Hexaboride Field Emitter筑波大数理¹ ○柳俊輔¹, 鶴田諒平¹, 荒井元哉¹, 大場宏祐¹, 佐々木正洋¹, 山田洋一¹Univ. Tsukuba¹, ^oShunsuke Yanagi¹, Ryohei Tsuruta¹, Motoya Arai¹, Kosuke Oba¹,Masahiro Sasaki¹, Yoichi Yamada¹

E-mail: s2320308@u.tsukuba.ac.jp

[背景]低い仕事関数(2.6 eV)を持つ六ホウ化セリウム(CeB_6)は新規高性能電界電子放出(FE)電子源材料として期待されている[1]が、高い反応性に起因する放出電流の急速な減衰が問題となっている。 CeB_6 は700℃~800℃での熱酸化により表面のみが酸化されることが知られており[2]、また酸化後の仕事関数も十分に小さい(3.1 eV)[3]。この表面酸化を利用して CeB_6FE 電子源の安定化を試みた。さらに CeB_6FE 電子源の放出電流減衰に関わる物理現象の検証を進めた。

[実験] CeB_6tip は化学エッチングにより先端を先鋭化したのち、高電界処理により先端を整形した[1]。フラッシングによる清浄化後、in-situ で CeB_6tip を800℃に加熱し、酸素分圧 1×10^{-5} Pa の雰囲気下で1000秒間の熱処理を行った。表面酸化を行った CeB_6tip のエミッションを蛍光板有のチャンバー、蛍光板無のチャンバーの両方でを行い、放出電流変化を評価した。

[結果] 図1に清浄 CeB_6tip (a)、酸化 CeB_6tip (b)からの放出パターンを示した。清浄 CeB_6tip からの放出パターンは四葉状であり、明るい部分が(310)面、中央の暗い部分が(100)面からの電子由来である。表面酸化後は放出パターンが丁度45度分ほど回転したような形状になっていることが確認された。この結果から、表面酸化によって(310)面が不活性化できたが、一方で(310)等価面間の稜線からのエミッションが強くなった、といったことが予測される。図2には酸化前後の放出電流変化の比較を示した。清浄 tip、酸化 tip とともに放出電流は放出直後に急激に減衰している。酸化後も放出電流が減衰する原因としては放出パターンから確認される稜線からのエミッションの影響、電子衝撃脱離による影響、酸素以外の分子の吸着による影響などが考えられるが、詳細な原因の解明については今後実験を進めていく予定である。この内、電子衝撃脱離による影響については講演にて議論する。

図1 CeB_6tip の放出パターン a: 酸化前、b: 酸化後図2 CeB_6tip の放出電流変化 赤: 酸化前、青: 酸化後

[1] K. Kasuya et al., Appl. Phys. Lett. 117, 213103 (2020).

[2] D. Zhihe et al., J. RARE EARTHS, 30, 11 (2012).

[3] 鶴田、他、第83回応用物理学会秋季学術講演会、21a-C306-10 (2022)

電界誘起酸素エッチングによって先鋭化された W 電界放出陰極のエネルギー分布

Energy Distribution of W Field Emitters Sharpened

by the Field-assisted Oxygen Etching

三重大院工 °志摩 惇紀, 岩田 達夫, 永井 滋一

Grad. Sch. of Eng., Mie Univ. °Junki Shima, Tatsuo Iwata, Shigekazu Nagai

E-mail: 424m219@m.mie-u.ac.jp

電界放出型電子源は高輝度電子源として、電子顕微鏡を始めとした顕微分析装置で利用されている。顕微分析装置の分解能に関わる電子源の高輝度化のための陰極先端の先鋭化手法として、電界誘起酸素エッチング^[1]が挙げられる。電界誘起酸素エッチングによって原子レベルで先鋭化された W 陰極は、極めて小さいソースサイズを有するとともに、低バイアス動作が可能であることが報告されている。本講演では、電界誘起酸素エッチングで先鋭化された W 電界放出陰極について、超高真空中における放出電流の安定性およびエネルギー分布について報告する。

電解研磨により曲率半径 19 nm に先鋭化された W<110> tip を、液体窒素で 108 K に冷却し、He(1.2×10^{-2} Pa)および O₂ (1.1×10^{-3} Pa) を導入して電界誘起酸素エッチングを施した。エッチングの進行に合わせて印加電圧を低下させることで、tip 先端の電界強度を一定に保ちながら先鋭化した。先鋭化された tip 先端は数原子で終端され、大気に暴露することなく到達圧力 5.3×10^{-8} Pa の下で 5 時間保持した後、放出電流の安定度および電界放出電子のエネルギー分析を行った。

5 時間後の電界放出パターンおよび印加電圧-229 V における放出電流の経時変化を Fig. 1 に示す。電界放出パターンが狭い領域に制限されており、陰極先端の数原子からの電界放出を反映している。放出電流は短時間では 3.4% の安定度であるが、スパイクノイズやステップ状の電流変動がみられた。この変動は、主要な残留ガスである H₂ あるいは CO の、先端の単原子に対する吸着脱離による仕事関数および電界増強因子の変化に起因していると考えられる。Fig. 2 は、酸素エッチング直後および 5 時間後の陰極からの電界放出電子のエネルギー分布を示している。標準試料として測定した W(111)と酸素エッチング直後の電界放出電子のエネルギー分布は、フェルミエッジを有する半値幅 300 meV 程度であることが判る。一方、5 時間後のエネルギー分布は引出電圧 0.20 kV において、半値幅 100 meV のピークに加えて、-1 eV 付近にピークを有する分布を示した。2 つのピークは引出電圧の増加に対して低エネルギー側へシフトした。講演当日は、低温でのエネルギー分析結果に基づいて、エネルギー分布のシフトおよびノッティンガム効果の影響の有無について議論する。

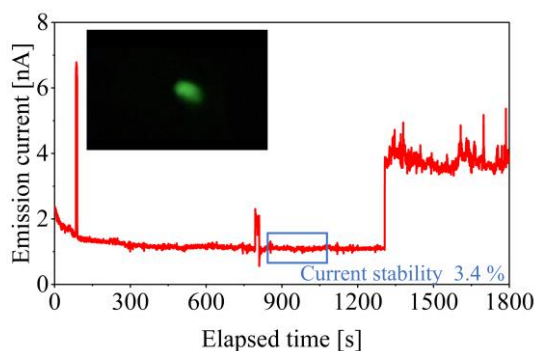


Fig. 1. Time trace of the emission current measured 5 hours after the field-assisted oxygen etching. (inserted figure) FEM image 5 hours after the field-assisted oxygen etching.

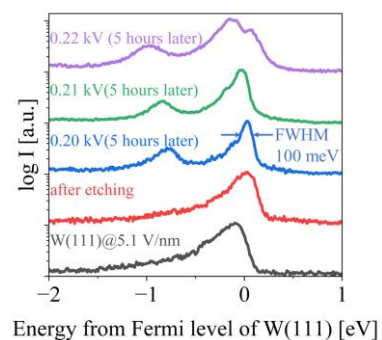


Fig. 2. Energy distribution 5 hours after the field-assisted oxygen etching.

【謝辞】本研究はカシオ科学振興財団の助成を受けたものである。

[1] F. Rahman, J. Onoda, K. Imaizumi, and S. Mizuno, Surf. Sci. **602**, 2128 (2008).

Ga-In 液体金属の気化熱によるジュール熱補償電界放射陰極

Field emission cathode using Ga-In liquid metal for compensation joule-heat

静岡大院工¹, 静岡大電研²

○(M1)佐藤 宏樹^{1,2*}, 根尾 陽一郎^{1,2}, 文 宗鉉^{1,2} 小田陸人^{1,2}

Grad. Sch. of Eng. Shizuoka Univ.¹, RIE, Shizuoka Univ.²,

○(M1)Hiroki Sato^{1,2*}, Yoichiro Neo^{1,2}, Jonghyun Moon^{1,2}Rikuto Oda^{1,2}

*E-mail: sato.hiroki.20@shizuoka.ac.jp

【研究背景】電子顕微鏡をはじめとした集束電子ビーム応用において、空間分解能の向上に最も効果がある電子源の輝度の向上のため、エネルギー分散が小さく、大電流が放射可能な高輝度電子源への要求がある。その中、畑らによって Li や Ga を被覆しテイラーコーンを形成させることで大電流を放射可能な電子源が発表された。¹⁻³ 我々は液体金属の気化熱によって温度を制御することにより、空間電荷制限下で 100 時間以上安定的に動作する電界放射陰極の作製に成功しており、その中でも特に Ga 液体金属電子源のジュール熱について報告を行った。本報告では、Ga と異なる表面張力や拡散速度を持つことから長時間にわたって更なる温度抑制が期待できる Ga-In を利用して、その特性を評価する。

【実験・結果】本研究では、液体金属として Ga-In を選択し、線径 0.1mm の多結晶 W(011)ワイヤを用いてヘアピンループを作製し、その頂点に陰極材料をスポット溶接した。その後、FE チップ先端を 25%KOH 溶液によって交流法で電解研磨した。FE チップの根元に Ga-In リザーバーを付着させた後、 10^{-7} Pa の超高真空チャンバー内にセットし Ga を表面拡散するため W-FIL に通電し加熱を行った後、電界電子放出の実験を行った。空間電荷制限電流領域まで動作させ、電界放射特性を測定したあと FN-plot をとった結果を Fig.1 に示す。FN 式から計算を行ったところ、Ga とは異なり、Ga-In では測定を重ねるにつれ放射面積が減少する様子が確認できた。

現在、母材を Mo に変更し実験を行っている。その結果についても併せて報告する予定である。

【参考文献】

- [1] K.Hata, et al, Ultramicroscopy 73 (1998) 73-77.
- [2] K.Hata, M.Kumamura, T.Yasuda and Y.Saito, Jpn. J. Appl. Phys. 33(1994) L1431-L1434.
- [3] Y Gotoh, et al, Applied Surface Science 146 (1999) 377-381

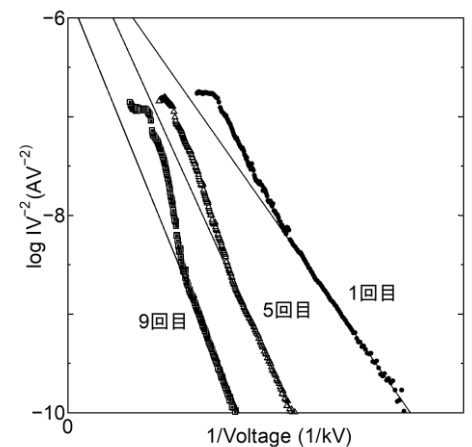


Figure 1. F-N plot

7 ビーム応用 | 一般セッション(口頭講演): 7.3 微細パターン・微細構造形成技術

[17p-D62-1~9] 7.3 微細パターン・微細構造形成技術

[17p-D62-1]

水素雰囲気中における高強度EUV照射によるEUVマスク吸収体の評価

○石田 隼登¹、原田 哲男¹、山川 進二¹ (1.兵庫県立大高度研)

[17p-D62-2]

主鎖切断型レジストのEUV照射による現像特性評価

○(M1)志賀 竜太¹、山川 進二¹、原田 哲男¹ (1.兵庫県立大工)

[17p-D62-3]

EUVレジストにおける反射型軟X線共鳴散乱を用いた凝集構造と感度特性の関係性の検討

○江渕 友梨¹、志賀 竜太¹、山川 進二¹、原田 哲男¹ (1.兵庫県立大学)

[17p-D62-4]

軟X線照射によるPDMS架橋体生成とX線エネルギー依存性

○中川 清子¹、大原 麻希²、横谷 明徳²、宇佐美 徳子³ (1.都産技研、2.量研機構、3.高エネ研)

[17p-D62-5]

EUVリソグラフィ用有機無機ハイブリッドレジストのリソグラフィ特性における基礎研究

○山本 洋揮¹、伊藤(筒井) 裕子²、岡本 一将²、古澤 孝弘² (1.量研高崎、2.阪大産研)

[17p-D62-6]

知的財産情報からの先端フォトリソの技術遷移特性

○綿引 康介¹、御堂 義博²、岡本 和也^{1,2,3} (1.山口大院、2.大阪大院、3.日本工大院)

[17p-D62-7]

電子ビーム露光による傾斜モールドの作製と転写

○(M1)柴崎 尚也¹、海野 徳幸¹、谷口 淳¹ (1.東理大先進工電子)

[17p-D62-8]

ハイブリッドソフトレプリカモールドを用いた残膜レス銀微細配線

○中村 有理¹、谷口 淳¹ (1.東理大先進工)

[17p-D62-9]

形状補正平面レチクルを用いた回転放物面鏡立体面リソグラフィの検討

○堀内 敏行¹、岩崎 順也¹、小林 宏史¹ (1.東京電機大工)

水素雰囲気における高強度 EUV 照射による EUV マスク吸収体の評価

Evaluation of EUV mask absorber durability to high-power EUV irradiation in hydrogen atmosphere

兵庫県立大学 ○(M1) 石田 隼登, 山川 進二, 原田 哲男

University of Hyogo, Hayato Ishida, Shinji Yamakawa, Tetsuo Harada

E-mail: ej24a001@guh.u-hyogo.ac.jp

EUV リソグラフィーにおいて EUV 露光機内には、光学系の表面に付着するカーボンコンタミを除去するため、水素を 5 Pa 程度導入している。EUV 励起による水素プラズマによりコンタミは除去されるが、水素プラズマ照射によりマスク吸収体がはがれる水素ブリスタという現象が報告されている。しかし、原因や発生条件が明らかになっていない。NewSUBARU 放射光施設では、高強度 EUV 照射や水素プラズマの影響を評価するための照射装置を開発している。本研究では、吸収体部分への高強度 EUV 照射に伴う EUV 反射率変化を評価し、水素ブリスタ発生条件を検証した。照射サンプルは、TaBO+TaBN 吸収体付きの Mo/Si 多層膜マスクを使用した。EUV 照射量は、 2600 kJ/cm^2 で、ウェハ 40 万枚に相当する照射量である。水素圧力は 70 Pa であり、加速試験のために通常よりも高い圧力を用いた。図 1 に照射による反射率の変化を示す。照射前の反射率は 1.18% で、照射により照射中心近傍は 1.14% 程度に変化した。水素ブリスタによる吸収体剥がれが生じると反射率は上昇するが、今回は生じていない。照射中心近傍の微少な反射率低下は、EUV 照射に起因する表面改質が原因である。そして、照射に伴い照射近傍も含めて吸収体層の反射率が全体的に上昇した。これは、水素プラズマによる表面クリーニング効果である。結論として、計 3 日間でウェハ 40 万枚相当の EUV 露光量を吸収体の一点へ照射したが、水素ブリスタは発生しなかった。したがって、通常の Mo/Si 多層膜上の TaBO+TaBN 吸収体では水素ブリスタは発生しないといえる。

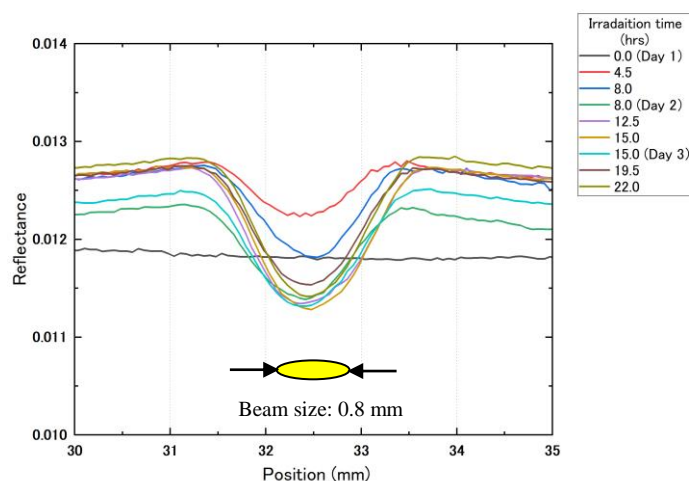


Figure 1: Measurement result of the in-situ reflectance of the absorber during the irradiation.

主鎖切断型レジストの EUV 照射による現像特性評価

EUV contrast curve measurement of the main chain scission type resists

兵庫県立大学 ○(M1)志賀 竜太, 山川 進二, 原田 哲男

University of Hyogo, Ryuta Shiga, Shinji Yamakawa, Tetsuo Harada

E-mail: s.ymkw@lasti.u-hyogo.ac.jp

レジスト材料の EUV 露光・現像に関与する化学現象は未だに解明されていない点があり、感度・解像度・LWR の要求仕様の達成は困難なままである。種々のレジスト材料について EUV 感度曲線を系統的に評価し、EUV レジストの基礎的な溶解挙動を明らかにする必要がある。本研究では、NewSUBARU 放射光施設のビームライン BL03 に構築された感度測定装置¹⁾を用いて主鎖切断型レジストの EUV 感度測定を実施し、その感度特性に対する初期膜厚および分子量の影響について検討した。初期膜厚の異なるレジスト ZEP520A の感度曲線を Fig. 1 に示す。本測定では、18~100 nm のレジスト薄膜をスピコートにて Si ウエハ上に成膜し、EUV 露光後、*o*-キシレンにて 60 秒間現像した。現像後の残膜が完全に除去される露光量 E_0 は厚膜の試料ほど大きい傾向にあった。 E_0 と初期膜厚の関係を Fig. 2 に赤丸で示す。赤線は両者の線形近似であり、 $R^2=0.96$ とよく一致した。この傾向の要因として考えられるのは、厚膜ほどレジスト内部で光吸収され、深さ方向の露光強度が低下することである。Fig. 2 の青線は透過率の逆数を表し、レジスト最下層での露光強度の低下を反映するが、 E_0 と透過率の逆数は対応しなかった。そのため、レジスト下層での露光強度の低下だけでなく、基板からの二次電子の供給量の変化も影響することが示唆される。この効果を見積もるには、実際に EUV 露光でのレジスト感度曲線を測定する必要がある。

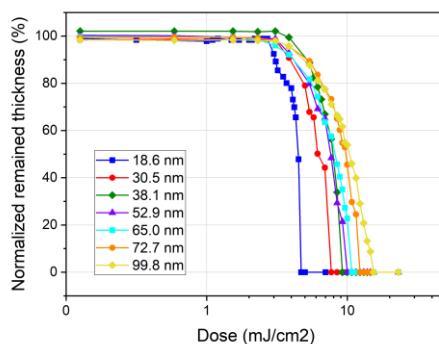


Fig. 1. Contrast curve of ZEP520A

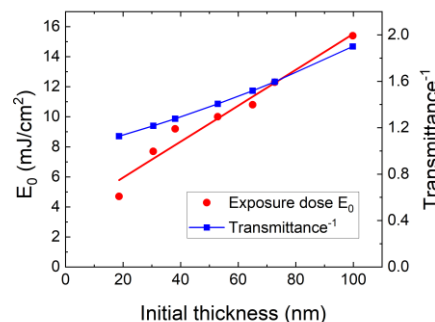


Fig. 2. Relationship between E_0 and initial thickness

ある。さらに、分子量の異なる主鎖切断型レジスト MwL(24K), MwM(49K), MwH(73K)の感度測定を実施した。50 nm 程度のレジスト薄膜をスピコートにて成膜し、EUV 露光後、アルキル鎖長の異なる酢酸ブチル(C=4)、酢酸アミル(C=5)、酢酸ヘキシル(C=6)にて 60 秒間現像した。アルキル鎖の長い現像液を用いた場合、感度曲線は低感度かつ高コントラストを示した。分子量が最小の MwL が高感度・低コントラストを示し、MwM と MwH は同等の感度曲線を示した¹⁾。本実験については当日の発表にて詳細を述べる。本研究では、プロセス条件の変化に応じて、 E_0 露光量だけでなく曲線形状の変化も生じた。このことから、解像特性の変化も示唆される。様々な条件での EUV 感度評価を実施することが、レジスト溶解挙動の理解において重要である。

1) R. Shiga, S. Yamakawa, T. Harada, T. Watanabe, “Current status of EUV flood exposure tool at NewSUBARU BL03”, *J. Photopolym. Sci. Technol.*, **37**, to be published.

EUV レジストにおける反射型軟 X 線共鳴散乱を用いた凝集構造と感度特性の関係性の検討

Study of the aggregation structure influence in EUV resist sensitivity.

兵庫県立大学, °江渕 友梨, 志賀 竜太, 山川 進二, 原田 哲男

Univ. of Hyogo, °Yuri Ebuchi, Ryuta Siga, Shinji Yamakawa, Tetsuo Harada

E-mail: s.ymkw@lasti.u-hyogo.ac.jp

【背景】半導体微細加工技術の発展には低線幅粗さ(LWR)レジストの開発が不可欠であり、そのためにはナノメートルオーダーの凝集分布評価が必要とされている。当研究室ではこれまでに Si ウエハ上に塗布されたレジスト薄膜について、反射型による軟 X 線共鳴散乱法 (Reflection-mode Resonant Soft X-ray Scattering: RSoXS) による評価を行ってきた。RSoXS 測定では、共鳴散乱を利用することで照射エネルギーに対応した官能基ごとの散乱スペクトルを得ることができる。本研究ではポリマーの分子量の異なる主鎖分解型レジストサンプルを 3 種類 (MwL, MwM, MwH) 使用し、反射型 RSoXS 測定によってそれぞれのサンプルの凝集構造の空間的分布を評価した。加えて、同一サンプルの感度測定を行い、反射型 RSoXS 測定結果から示唆されるレジスト薄膜中の凝集の空間分布とレジストの感度特性の関係性についての検討を行ったので報告する。

【実験】放射光施設 NewSUBARU の BL-10 にて反射型 RSoXS 測定を行った。軟 X 線を斜入射角 5° で照射し、サンプルからの反射光、散乱光を CMOS カメラで検出した。測定チャンバー内の反射型 RSoXS 測定系の概略図を Fig. 1 に示す。得られた反射・散乱光画像から縦軸を散乱強度、横軸を散乱ベクトルに変換してグラフ化した。レジスト薄膜中の散乱体の構造周期 d は散乱ベクトルから求めることができ、構造周期 d は散乱ベクトル q_y が 0.1 nm^{-1} のとき 60 nm となる。また、入射エネルギーは C_k 領域の XAS 測定によって導出した吸収スペクトルから炭素の吸収がほとんどなく、レジスト内部を透過する 280.0 eV を入射エネルギーとして使用した。また、感度測定は同施設内の BL-3 で行った。レジスト薄膜に EUV 光を様々な露光量にて露光を行い、現像処理後に膜厚を測定した。現像後の残膜率が 0% となる露光量 E_0 が感度、 E_0 付近の感度曲線の勾配 (γ 値) がコントラストを表す。

【結果】Fig. 2, Fig. 3 に反射型 RSoXS 測定と感度測定によって得られた結果を示す。散乱強度の高低は対応する構造周期の散乱体の多さを表しており、高いと多く低いと少ないことを示す。つまり、Fig. 2 より MwL は 0.03 nm^{-1} (180 nm) 付近の大きい凝集が少なく、MwH では多いことが示唆された。また、Fig. 3 からコントラストを示す γ 値はそれぞれ 1.38 (MwL), 4.05 (MwM), 4.85 (MwH) となり、分子量が大きいほどコントラストは良くなった。これら 2 つの測定から分子量の大きいレジストサンプルでは大きい凝集の割合が多いことで、感度の低下とコントラストの向上に結び付いたと考える。凝集構造と感度特性の関係性を示唆する結果が得られた。

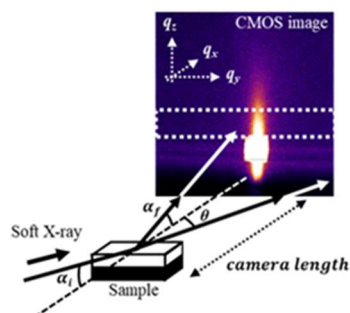


Fig. 1 Geometry of the reflection-mode RSoXS.

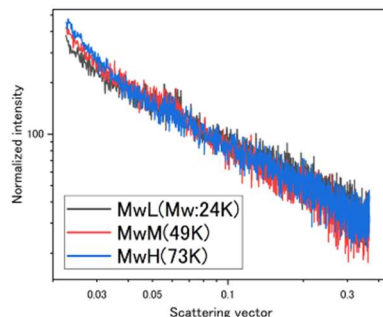


Fig. 2 Scattering spectra of MwL, MwM and MwH at 280.0 eV .

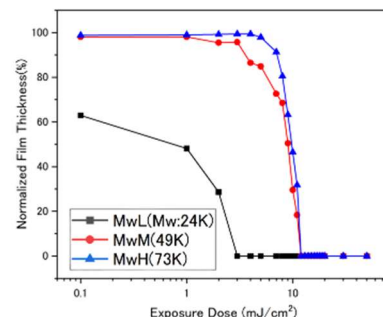


Fig. 3 Sensitivity curve of MwL, MwM and MwH.

軟 X 線照射による PDMS 架橋体生成と X 線エネルギー依存性

Cross-linking of PDMS by irradiation of soft X-rays and dependence of X-ray energy

都産技研¹, 量研機構², 高エネ研³ ○中川 清子¹, 大原 麻希², 横谷 明德², 宇佐美 徳子³

TIRI¹, QST², KEK³, °Seiko Nakagawa¹, Maki Ohara², Akinori Yokoya², Noriko Usami³

E-mail: nakagawa.seiko@iri-tokyo.jp

集積回路の微細化に伴い、リソグラフィー用の光源として、エキシマレーザー光から、極端紫外光～軟 X 線領域の短波長光源が求められるようになってきた。一方、これら短波長光によるエネルギー付与に関する情報は少ない。我々は、ガンマ線の線量評価で利用されているアラニンを用いて、軟 X 線照射によるエネルギー付与を詳細に調べたところ、表面近傍で高密度に生成したラジカルが再結合により消失し、単位線量あたりのラジカル生成量が減少することがわかった¹⁾。これは、軟 X 線照射が、局所的高エネルギー付与であることを示唆し、高分子架橋も効率よく起きると考えられる。そこで、ポリジメチルシロキサン(PDMS)に高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリーの BL-27 において、2.5～5 keV の単色 X 線を照射し、架橋体の生成量に対する照射線量、線量率、X 線エネルギーの影響を調べた。

Fig. 1 に、3.5 keV の X 線を照射した時の PDMS 架橋体生成量をプロットする。ガンマ線照射では、25 kGy 以上の線量で架橋体の生成が始まることが知られている。軟 X 線照射では、低線量領域では線量に比例して架橋体が生成し、高線量でサチレーションする。線量に比例した架橋体の生成は、線エネルギー付与(LET)の大きいイオンビーム照射と同じである。低線量率照射の方が低線量域での架橋体生成効率は大きい、サチレーションする線量域では、線量率依存性は明確には確認できなかった。また、PDMS 架橋体生成量の照射 X 線エネルギー依存性を Fig. 2 に示す。X 線のエネルギーが低いほど、低線量でサチレーションすることがわかる。X 線のエネルギーが低いと、透過しない分、表面近傍でのエネルギー付与が大きいことが原因と考えられる。特に、PDMS は 1.84 keV に K 吸収端を持つケイ素を含むため、2.5 keV の X 線照射では、光電子のエネルギーが 1 keV 以下であり局所的高 LET 照射となり、効率的な架橋が起きたと推測される。

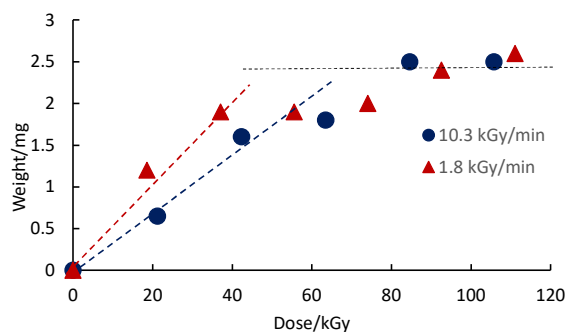


Fig. 1 Cross-linking yield of PDMS by irradiation of 3.5 keV X-rays

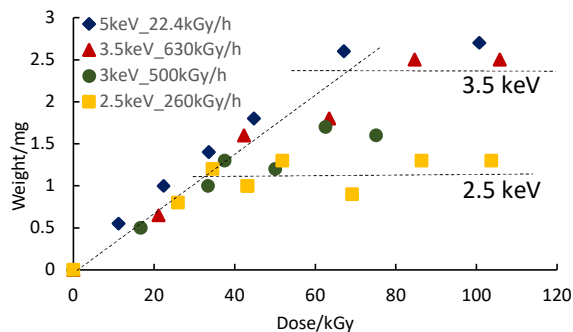


Fig. 2 Dependence of X-ray energy on cross-linking yield of PDMS

参考文献：1) S. Nakagawa et al., Radiat. Phys. Chem., 214, 111304 (2024).

EUV リソグラフィ用有機無機ハイブリッドレジストの リソグラフィ特性における基礎研究

Fundamental Study on Lithographic Characteristics of Organic-Inorganic Hybrid Resists for EUV Lithography

量研高崎¹, 阪大産研² °山本 洋揮¹, 伊藤(筒井) 裕子², 岡本 一将², 古澤孝弘²

QST¹, SANKEN, Osaka Univ.²

°Hiroki Yamamoto¹, Yuko (Tsutsui)Ito², Kazumasa Okamoto², Takahiro Kozawa²

E-mail: yamamoto.hiroki@qst.go.jp

半導体加工技術であるリソグラフィは、コンピューターの更なる高性能化のために必要不可欠な加工ツールである。現在、極端紫外光 (EUV) リソグラフィが実用化されたが、量産ラインにおいて化学増幅型レジストが使用されている。しかしながら、10nm 未満のパターンを加工するのに極めて少ない照射量で、かつ 1 nm 以下の精度で加工することが要求されている。加えて、パターン倒壊に伴う極薄膜化が必要不可欠であるため、十分なエッチング耐性をもつレジストが必要である。それゆえ、メタルレジストなどといった革新的な材料の研究・開発が進められている。本研究では、有機無機ハイブリッドレジストを合成し、リソグラフィの性能評価を行った。

合成した有機無機ハイブリッドレジスト溶液を Si 基板上にスピンコートすることで、50 nm の薄膜を形成した。その後、EUV 露光装置で照射し、シクロヘキサンノンで現像し、感度曲線を作製した。また、反応イオンエッチングによって合成したレジストのエッチング耐性を調べた。

Fig. 1 は Hf の金属コアおよびリガンドがメタクリル酸 (MMA) からなる有機無機ハイブリッドレジストの EUV による感度曲線である。このレジストの感度はおよそ 3 mJ/cm² であることがわかり、他の以前に合成した Zr と Ti からなる有機無機ハイブリッドレジスト (4 mJ/cm², 5 mJ/cm²) よりも感度が高いことが明らかになった。Fig. 2 は Hf から成る金属コアおよびリガンドが MMA から成る有機無機ハイブリッドレジストの 32 nm の 1:1 のラインアンドスペースパターンの SEM 画像である。100 kV の電子ビーム描画装置を使って微細パターンを試みた結果、Zr と Ti からなる有機無機ハイブリッドレジストに比べて高解像性を示すことが明らかになった。このように、合成した Hf から成る金属コアおよびリガンドが MMA から成る有機無機ハイブリッドレジストは次世代レジスト材料として有望であることが明らかになった。

<謝辞> 本研究の一部は、日本学術振興会の科研費 (21KK0262) の支援を受けて行いました。

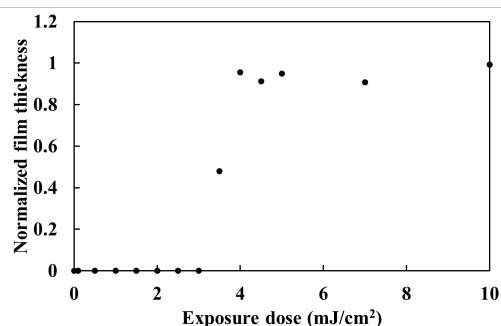


Fig.1. Sensitivity curves of Hf-based organic-inorganic hybrid resists upon exposure to EUV.

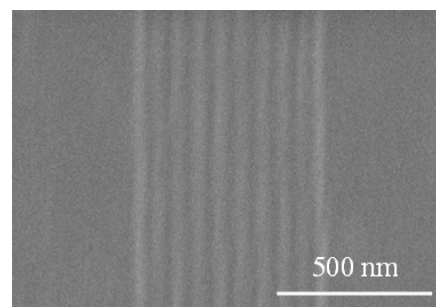


Fig.2. Top-down SEM micrographs of line & space patterns delineated on Hf-based organic-inorganic hybrid resists upon exposure to EB.

知的財産情報からの先端フォトレジストの技術遷移特性

Technology Transition Characteristics of Advanced Photoresist from IP Information

山口大院¹, 大阪大院², 日本工大院³ °綿引康介¹, 御堂義博², 岡本和也^{1,2,3}

Yamaguchi University¹, Osaka University², Nippon Institute of Technology³

°Kosuke Watahiki¹, Yoshihiro Midoh², Kazuya Okamoto^{1,2,3}

E-mail: c008wcw@yamaguchi-u.ac.jp

1. はじめに

先端半導体はその達成指標として PPAC (Power-Performance-Area-Cost) を掲げているが、微細化が“More Moore”の概念のもと依然として重要な位置づけにあり、そのコスト支配因子はフォトリソグラフィ工程にある。縮小投影露光方式は「Rayleigh の式」に基づく 2 点間分離・光学解像度から成立し、2008 年以降は ArF 液浸露光装置単体の解像度限界値 38nm ($k_1=0.265$, NA=1.35, $\lambda=193\text{nm}$) で固定され多重露光の時代を迎え、2020 年頃より EUVL ($\lambda=13.5\text{nm}$) が量産対応に至っている。その基盤材料であるフォトレジストの市場規模は 2.5 兆米ドル (2026 年予測) と延伸し、産業的価値を有することから研究開発の主軸は企業にあり、知的財産情報からの当該技術変遷の社会科学的視座からの究明は日本の産業競争力を維持するうえで意義を有する。

2. 研究方法

当該メタ情報として適用した 3 つの File Index (FI), G03F7/038_601 (化学増幅機構を有するネガ型レジスト), G03F7/039_601 (同ポジ型レジスト), G03F7/004 (感光材料) で特許の基礎出願日 (基準日) が 1990 年 1 月 1 日以降の国内特許 11,749 件を抽出した。特許出願と事業収益性の時系列変動, AI/NLP (BERT) による視認可能な情報開示特性について検討し^[1], ここでは、露光光源波長毎の特許分類や出願基準年等を活用し EUVL レジスト (EUV-R) の技術変遷に注視した。

3. 結果と考察

売上高と出願件数の移動平均の相関係数により各種レジストの研究開発転換が見出され、特許明細書要約の文書クラスタ解析からは権利化に向けた特徴的な開示特性が得られた。次に、抽出した特許群に対し露光光源波長が ArF と EUV である特許分類 F タームを用い、各波長レジスト (R) の累積出願件数推移とロジス

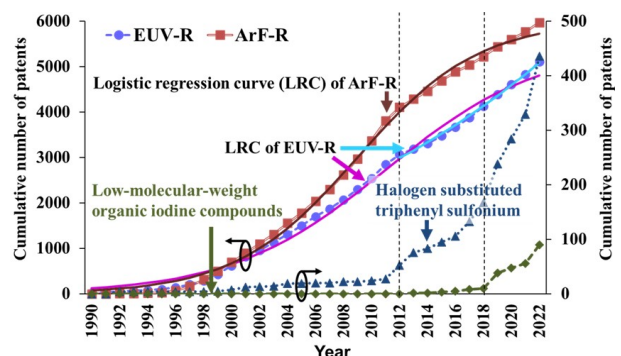


Fig. 1. Analysis of EUV-R patents in F-terms.
(Database : CyberPatent Desk)

ティック回帰及び EUV-R で近年累積出願件数が急伸している特許分類を Fig.1 に示す。曲線が緩やかになる ArF-R と比較して EUV-R の回帰曲線は 2012 年頃に変曲点を示す。これは EUV 光源出力の大幅な増大に伴う量産適用を示唆し、かつハロゲンやヨウ素の特許分類の累積出願件数の急増時期とも符合する。このことは当該業界の SDGs/ESG への対応を示唆する結果と推察され、今後の研究開発動向の予測に一定の指針を与える。

参考文献 : [1] 綿引康介, 御堂義博, 岡本和也 : 日本経営システム学会誌, 40(3) (2024) 227.

電子ビーム露光による傾斜モールドの作製と転写

Slanted mold fabrication by electron beam lithography and replication with fabricated mold

東京理科大学¹ ○(M1) 柴崎 尚也¹, 海野 徳幸¹, 谷口 淳¹

Tokyo University of Science¹, ¹Shibasaki Naoya¹, Noriyuki Unno, Jun Taniguchi¹

E-mail: 8124526@ed.tus.ac.jp

1. 緒論

近年, 急速な通信技術と電子デバイスの進化は私たちの生活を豊かにしている. 中でも AR と VR といったヘッドマウントディスプレイは 3D 表示による次世代インタラクティブディスプレイである[1]. そのデバイスには回折格子が用いられている. 図 1 に代表的な回折格子を示している.

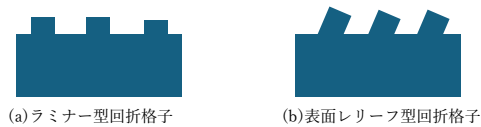


図 1 代表的な回折格子

しかし, 図 1 (b)を作成するのはフォトリソグラフィで図 1 (a)を作製した後, 反応性イオンエッチング(RIE)の工程が必要となる[2]. そこで本研究では 2つの工程をまとめて 1 回の工程で得られるよう試料を傾けて電子ビーム露光(Electron Beam Lithography: EBL)によるパターンニングをし, それをモールドとして用いて UV ナノインプリントリソグラフィ (UV-NIL) で転写したので報告する.

2. 実験方法

電子ビームレジストは ZEP520A (日本ゼオン(株))を用いた. このレジストをスピコートで 4000 rpm, 400 秒の条件で実験を行ったものを 1 回目は 80 °C, 360 秒で 2 回目は 120 °C, 20 分でベイクをした. 次に接触式段差計 α ステップ (KLA-Tencor Japan 社製) で膜厚を計測した. 次に走査型電子顕微鏡 (SEM: ERA-880FE, ELIONIX 社製) で加速電圧 4 kV, Dose 量が 20 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, 幅 180 nm, 間隔幅 270 nm, 長さ 90 μm での線状パターンを描画した. この時, 試料は 45° の試料台に乗せて傾けた状態で描画をした. そして ZED-N50 (日本ゼオン(株)製)で 30 秒現像し, 2-プロパノールでリンスをした. 離型処理を行うのにプラチナコーティングを施し, 防汚コーティング剤であるオプツール DSX (ダイキン工業(株)製)に 3 時間浸潤し, 120 °C, 5 分ベイク, そして Novec7200(3M ジャパン社製)で 1 分間リンスを行いました. このモールドに対して PAK-01CL を 1 滴落とし, コスモシャイン A4300 (東洋紡(株)製)を被せ UV-NIL を行った. 最後にモールドの一部をとったものと NIL したものでプラチナコーティングを行うことで走査型電子顕微鏡 (SEM: ERA-880FE, ELIONIX 社製)で観察を行った.

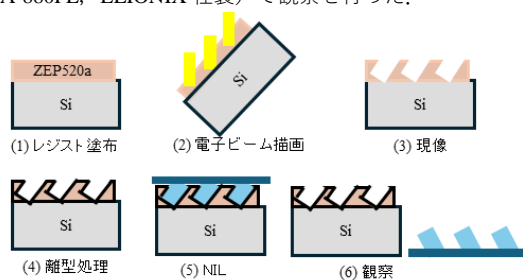
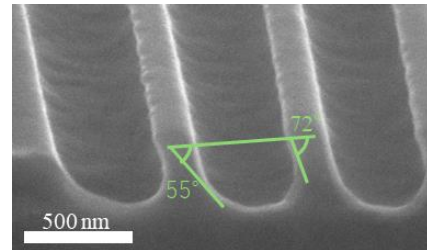


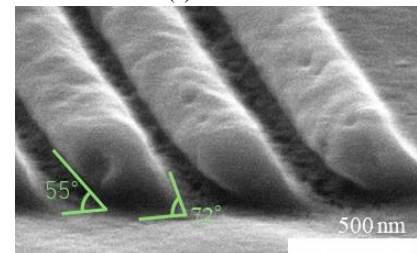
図 2 実験概要図

3. 実験結果

SEM で観察した結果, Dose 量 20 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ の時, 図 3 のようになった.



(a)モールド



(b)転写

図 3 斜めの描画のモールドと転写の SEM 画像

作製したモールドは斜めに抜けていることが図 3 (a)から見て取れる. また, 転写した図である図 3 (b)からも傾いていることが分かる. このことから目的の構造である図 1 (b)を得られたと言える. しかし, 図 3 (a)の緑の線に注目すると左右の傾きが異なっていることが分かる. 傾きが大きい方は 72°, 小さい方は 55° となっている. これは 45° よりも垂直に近い角度になっており, 左右で角度の大きさが異なっている. 誤差が生じた要因は, 低加速電圧の電子ビームの前方散乱によるものが大きいと考えられ, 左右の角度の違いについてはレジスト内に侵入する深さが異なるため, 侵入が深いほうが大きい誤差と考えられる.

4. まとめ

ZEP520a のレジストで試料を 45° 傾かせた状態で低加速電子線描画を行うことにより表面レリーフ型回折格子を作成することができた. 今後, 前方散乱の影響の抑制と様々な条件による試料の作製を目指していく.

参考文献

- [1] Zhitian Shi, Konstantins Jefimovs, Antonino La Magna, Marco Stampanoni, Lucia Romano, "High aspect ratio tilted gratings through local electronic field modulation in plasma etching", Applied Surface Science, 2022, vol 588, 30 June 2022, 152938, pp 1
- [2] Tapani Levola, Pasi Jaakkonen, "Replicated slanted gratings with a high refractive index material for in and outcoupling of light", 2007 Optical Society of America, 2007, Vol.15, No.5, pp 5-7

ハイブリッドソフトレプリカモールドを用いた残膜レス銀微細配線

Hybrid soft replica mold for fine Ag wiring without a residual layer

東京理科大学 ○中村 有理, 谷口 淳

Tokyo University of Science, ○Yuri Nakamura, Jun Taniguchi

E-mail: 8123527@ed.tus.ac.jp

1. 緒論

センサやフレキシブルディスプレイなどの電子デバイスの小型化・高機能化に伴い、金属配線の微細化が求められている。通常、 $10\ \mu\text{m}$ 以下の配線は、スパッタや蒸着により薄膜を形成した後、リソグラフィとエッチングにより形成される。この手法は、高解像度で精細なパターンニングが可能であるという利点がある。一方で、真空環境や大型装置を必要とするため、製造タイムやコストが増加するという欠点があり、スパッタレス、マスクレスの技術が求められている [1]。そこで、本研究では感光性導電ペーストを用いて、真空環境を不要とするナノインプリント (NIL) で $5\ \mu\text{m}$ 以下の微細配線形成を試みた。信頼性の高い配線を形成するためには、隣接する線を独立させる必要がある。しかし、NIL 工程中、一つ一つの線の間を接続させる残膜とよばれる余剰層が発生し、取り除くことが難しい [2]。そこで、レプリカモールドの凸部に選択的に遮光層を形成することで、下部の感光性導電ペーストの硬化を防ぎ、現像を行い独立したパターンを実現させた。本報では、導電性を有した $5\ \mu\text{m}$ 以下で高アスペクト比なパターンニングのプロセスについて報告する。

2. 実験方法

初めに、ハイブリッドソフトレプリカモールド (HSRM) の作製方法を図 1 に示す。まず、Si マスターモールド (L/S 幅: $5\ \mu\text{m}$, ピッチ: $15\ \mu\text{m}$) に銀インク (Smart Screen, GenesInk Inc.) を充填させた (図 1(a))。スクージ後に 150°C 5 分で焼成することにより、上部と底部の銀を分離させた (図 1(b))。これは、銀インクの溶媒の蒸発により体積が収縮することに起因する。その後、PET フィルム (PET-6010, C.I. Takiron Co.) をマスターモールドに被せ、 85°C 5 分熱を与えることで、上部に残った銀を除去した (図 1(c))。最後に、UV 硬化樹脂 (PARQIT OEX-028-X433-3, Autex Co., Ltd.) で転写を行い、底部に残留した銀を掬い取った (図 1(d))。以上の工程によって、凸部のみに金属の遮光層を有した HSRM を得た (図 1(e))。このレプリカモールドの離型処理には、 85°C 30 分の加熱と、液相処理 (OPTOOL DSX, Daikin Industries, Ltd.) を用いた。

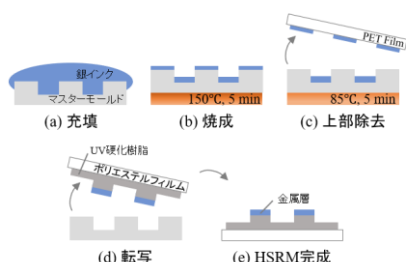


図 1. Hybrid Soft Replica Mold の作製方法の概略図

次に、HSRM を用いて、感光性導電ペーストを用いた L/S パターンの作製方法を図 2 に示す。まず、HSRM に感光性導電ペースト (LCAG-140K2, Toray Industries, Inc.) を充填させた (図 2(a))。次に、スクージをすることで余剰なペーストを取り除いた (図 2(b))。その後、転写基板上に HSRM を載せ、 $300\ \text{N}$ で加圧を行いながら UV を照射した (図 2(c))。この時、レプリカモールドの凸部分の下部に在るペーストの硬化を防

ぐため、レプリカモールド側から照射を行った。離型後、 Na_2CO_3 溶液を用いて現像を行い、未硬化のペーストを取り除いた (図 2(d))。最後に、 140°C 30 分熱を与えることで、感光性導電ペーストに含まれる金属微粒子同士を焼結させ、硬化させた (図 2(e))。

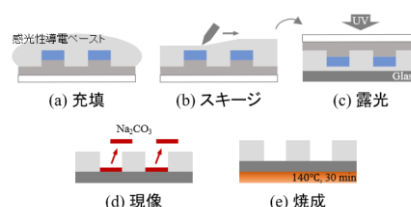


図 2. 微細配線形成方法の概略図

3. 実験結果

凸部に遮光層を有す HSRM を、走査型顕微鏡 (SEM) で斜め観察した結果を図 3(a), (b) に示す。図 3(b) より、L/S パターンの凸部に薄膜が確認できた。また、薄膜部の下部には樹脂によって作成されたパターンがみられた。したがって、薄膜は銀インクによって作製された遮光層であることがわかる。幅は $5\ \mu\text{m}$ 、高さは $5\ \mu\text{m}$ であった。

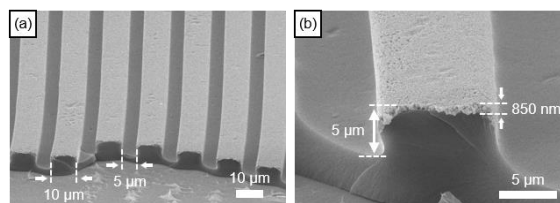


図 3. Hybrid Soft Replica Mold の SEM 観察結果

HSRM を用いて形成された微細配線の SEM 斜め観察結果を図 4(a), (b) に示す。凸の Line 構造が見られ、図 4(b) に示す通りパターン間に残膜は確認されなかった。したがって、隣接するパターンは独立しているとわかる。幅は $4.8\ \mu\text{m}$ 、高さは $6.5\ \mu\text{m}$ であった。HSRM と比較して高さが 1.3 倍となっている要因は、残膜層の厚みによるものであると考えられる。

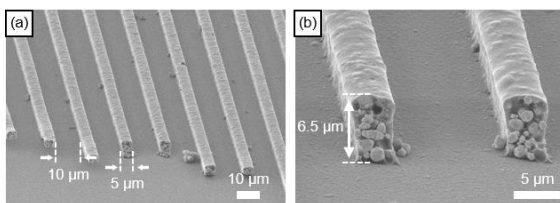


図 4. 感光性導電ペーストを用いたパターンの SEM 観察結果

4. まとめ

感光性導電ペーストを用いて、 $5\ \mu\text{m}$ 以下で高アスペクト比な微細配線を形成することができた。本手法は、微細金属配線の高効率化に役立つと期待される。

参考文献

- [1] A. C. Arias, J.D. MacKenzie, I. McCulloch, J. Rivnay and A. Salleo, *Chem. Rev.*, **100** (2010), 3-24.
- [2] V. R. Kolli, C. Woidt, and H. Hillmer, *Microelectron. Eng.*, **149** (2016) 159.

形状補正平面レチクルを用いた回転放物面鏡立体面リソグラフィの検討

Stereophonic Lithography Using Paraboloid Mirrors and a Compensated Flat Reticle

東京電機大学 °堀内敏行, 岩崎順哉, 小林宏史

Tokyo Denki Univ., °Toshiyuki Horiuchi, Jun-ya Iwasaki, Hiroshi Kobayashi

E-mail: horiuchi@cck.dendai.ac.jp

1. まえがき

回転放物面鏡を上下に対向配置した光学系を用いて、緩い任意曲面上に数 10～数 100 μ m 線幅の大パターンを転写する立体面リソグラフィを検討して来た。本報では、パターン形状を補正した平面レチクルを用いて、曲面上に所望のパターンを形成できるかを検討した。

2. これ迄の経緯と課題

当初、被露光面と同じ形状の曲面レチクルを用いてパターン形成が可能であることを実証した。しかし、光学系と一方向からの平行照明に起因して投影パターンが歪むことが分かった¹⁾。一方、任意の曲面レチクルを製作するツールや受託業者は存在しないため、曲面レチクルの使用は技術の適用性を著しく阻害すると考えられた。そこで、平面レチクルを試用した結果、形状は歪むが、被露光面の凹凸が数 mm 以下であれば、パターン転写は可能であることが分かった²⁾。一方、上ミラー開口面に投影されるパターン像形状を計算した結果、実際のパターン形状と良く合致した。そして、レチクルパターンを補正すれば、上ミラー開口に置いた Si ウェハに所望のパターンを転写できた³⁾。

3. 曲面試料上への投影像の計算

上ミラーの開口に目標形状の正方格子像を形成できるようにしたことは、投影光学系起因の歪を補正したことに相当する。試料曲面上に目標形状の正方格子像を形成するには、さらに、試料曲面の形状と高さ位置に対応して生ずる歪を補正する必要がある。そこで、まず、上ミラーの開口に目標の正方格子像を形成できるレチクルで図 1 に示す最大凹み 6.0 mm の試料スプーン凹面へ投影するときの像の形状を計算し、実測値と比較した。結果を図 2 に示す。計算値は実際とよく合致した。

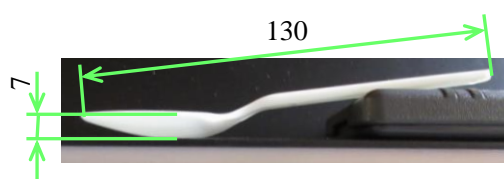


Fig. 1. Side view of the plastic spoon.

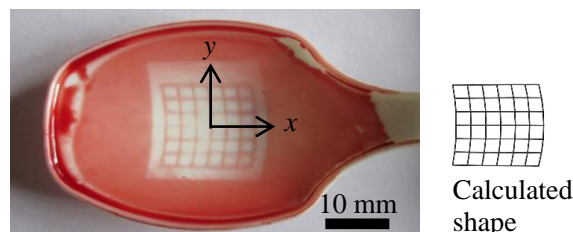


Fig. 2. Comparison of resist patterns and calculated lattice patterns before the curvature compensation.

4. 正方格子を目標とするレチクル補正と効果

レチクルの格子点の初期値 (x_r , y_r) を図 2 の計算に用いた値とし、その投影位置(x_p , y_p)と目標位置(x_t , y_t)との比率 x_p/x_t , y_p/y_t により、レチクルの格子点を $x'_r = x_r / (x_p/x_t)$, $y'_r = y_r / (y_p/y_t)$ に補正することを繰り返した。なお、 $x_t=0$ (y 軸)の格子点は、 $x'_r = x_r - (x_p - x_t)$ と補正した。計算上、スプーン凹面への投影点が 2mm ピッチ、12mm 角の正方格子となるレチクルを設計して転写した結果を図 3 に示す。目標形状にレジストパターンを形成でき、補正計算の適切性も示せた。

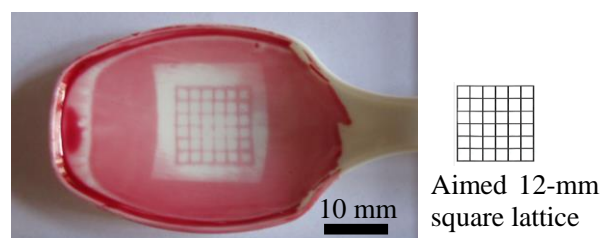


Fig. 3. Resist patterns with aimed shapes printed using a flat reticle with compensated patterns.

5. まとめ

パターンの形状を補正した平面レチクルを用いれば、曲面試料上に所望の形状のパターンを転写できることを実証できた。

本研究の一部はジェイアイエンジニアリングとの共同研究資金および湘南インスツルメンツからの研究奨励寄付金により行った。

- 1) T. Horiuchi et al.: JJAP, **62**, SG1026 (2023).
- 2) 堀内敏行, 小林宏史: 第 70 回応物春季学術講演会, 15a-D209-5, 06-005 (2023).
- 3) T. Horiuchi et al.: JJAP, **63**, 03SP92 (2024).