

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)

[7a-P01-1~9] 7 ビーム応用 (ポスター)

[7a-P01-1]

液体リチウムシートターゲットによるEUV光とイオンの放出特性

○山本 隼也¹、早坂 信太郎¹、矢澤 隼斗¹、杉浦 使¹、空本 龍弥¹、本田 能之²、岩本 文男²、永井 伸治²、林崎 規託³、滑川 雅広⁴、作山 弘幸⁴、東口 武史¹ (1.宇都宮大、2.ギガフォトン株式会社、3.科学大、4.助川電気工業株式会社)

[7a-P01-2]

EUVスペクトルのCO₂レーザーパルス幅依存性

○早坂 信太郎¹、矢澤 隼斗¹、空本 龍也¹、小倉 望¹、佐藤 稜馬¹、難波 慎一²、東口 武史¹ (1.宇都宮大、2.広島大)

[7a-P01-3]

ナノテラスBL09WにおけるマルチビームX線イメージング

○矢代 航^{1,2,3,4,5}、上田 亮介¹、亀沢 知夏²、住石 海希⁴、祖山 均⁴、フォグリ ヴォルフガング⁶、白澤 徹郎⁷、工藤 博幸⁸ (1.東北大国際放射光セ、2.東北大多元研、3.東大院工物工、4.東北大院工ファイ、5.東北大院歯、6.東京学芸大教育、7.産総研計量標準セ、8.筑波大システム情報)

[7a-P01-4]

2次元X線検出器を用いた希薄濃度試料に対する迅速蛍光XAFS計測

○宇留賀 朋哉^{1,2}、金子 拓真¹、井上 朋直³、作村 拓人³、今井 英人^{1,4}、内本 喜晴¹ (1.京大人環、2.高輝度セ、3.リガクX研、4.FC-Cubic)

[7a-P01-5]

40 keV励起硬X線光電子分光法の開発

○安野 聡¹、西原 達平¹、Seo Okkyun¹、高木 康多¹ (1.高輝度光科学研究センター)

[7a-P01-6]

EUV多層膜ミラー用の化学エッチング自動化装置

○(M1)柴田 涼平¹、緒形 凜久¹、中込 由美恵¹、豊田 光紀¹ (1.東京工芸大工)

[7a-P01-7]

HAXPESを利用した基板上レジスト材料のEELS測定

○鈴木 哲¹、住田 弘祐² (1.兵庫県立大、2.マツダ (株))

[7a-P01-8]

電離圏プラズマ中の電子ビーム挙動のシミュレーション解析

○小林 太陽¹、田中 琉暉¹、安田 雅昭¹ (1.阪公大院工)

[7a-P01-9]

超低地球軌道 (VLEO) 衛星に対する中性大気環境地上対照試験

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

液体リチウムシートターゲットによる EUV 光とイオンの放出特性

Characteristics of EUV and ion emission by a liquid lithium sheet target

宇都宮大学¹, ギガフォトン株式会社², 東京科学大学³, 助川電気工業株式会社⁴

○(M1) 山本 隼也¹, (M1) 早坂 信太郎¹, (M2) 矢澤 隼斗¹, 杉浦 使¹, 空本 龍弥¹,
本田 能之², 岩本 文男², 永井 伸治², 林崎 規託³, 滑川 雅広⁴, 作山 弘幸⁴, 東口 武史¹
Utsunomiya Univ.¹, Gigaphoton Inc.², Institute of Science Tokyo³, Sukegawa Electric Co., LTD.⁴,
○(M1) Shunya Yamamoto¹, (M1) Shintaro Hayasaka¹, (M2) Hayato Yazawa¹, Tsukasa Sugiura¹,
Tatsuya Soramoto¹, Yoshiyuki Honda², Fumio Iwamoto², Shinji Nagai², Noriyosu Hayashizaki³,
Masahiro Namekawa⁴, Hiroyuki Sakuyama⁴, and Takeshi Higashiguchi¹

E-mail: shunya.yamamoto0412@gmail.com

EUV リソグラフィーでは高 NA の露光技術開発が進んでいる。マスクの欠陥検査用 EUV 顕微鏡には光源の高輝度化のほか高空間分解能化も必要である。そこで、Mo/Si 多層膜鏡による光学系ではなく、フレネルゾーンプレートによる高空間分解能化の可能性が検討され、EUV 光源にも狭帯域スペクトルが求められる [1,2]。しかしながら、光源から EUV 光と同方向に放出される高速イオンデブリが捕集鏡の反射率を下げる問題がある。本研究では、循環液体金属 Li シートターゲットによる EUV 変換効率と高速 Li イオンのエネルギースペクトルを明らかにした。

図 1 は実験装置である。流速が約 10 m/s の循環液体 Li シートターゲットに波長 1064 nm の Nd:YAG レーザーを集光照射した。図 1 のようにファラデーカップと EUV 検出器を配置し、高速イオンの飛行時間波形と放出される EUV 光のエネルギーを計測した。図 2 は最大運動エネルギーのレーザー強度依存性である。ファラデーカップによって観測された飛行時間波形を運動エネルギースペクトルに換算した。高速イオンの最大運動エネルギーはレーザー強度の 0.8 乗に依存した。発表では高速イオンの計測結果と EUV 光の変換効率を報告する。

参考文献

- [1] D. B. Abramenko *et al.*, Phys.-Usp. **62**(3), 304 (2019).
- [2] T. Higashiguchi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**(16), 161502 (2006).

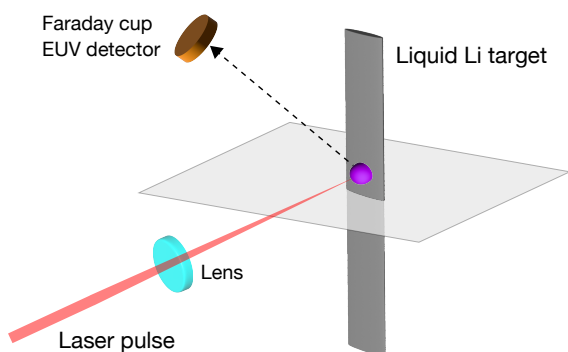


Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus.

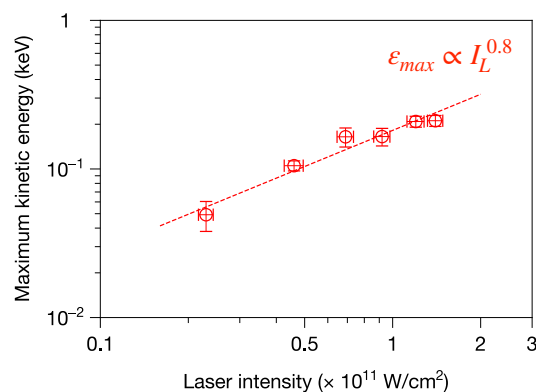


Fig. 2. Laser intensity dependence of ion energy.

EUV スペクトルの CO₂ レーザーパルス幅依存性

CO₂ laser pulse duration dependence of EUV spectra

宇都宮大学¹, 広島大学², [○](M1) 早坂 信太郎¹, (M2) 矢澤 隼斗¹, 空本 龍弥¹, 小倉 望¹,
佐藤 稜馬¹, 難波 慎一², 東口 武史¹

Utsunomiya Univ.¹, Hiroshima Univ.², [○](M1) Shintaro Hayasaka¹, (M2) Hayato Yazawa¹,
Tatsuya Soramoto¹, Nozomi Ogura¹, Ryoma Sato¹, Shinichi Namba², and Takeshi Higashiguchi¹
E-mail: sintarou.hayasaka0316@gmail.com

先端半導体リソグラフィでは、EUV 光が露光用光源として用いられており、電子回路の高性能化が飛躍的に進展している。次世代 EUV 露光機としての high-NA (NA=0.55) 露光機には、これまでの NA=0.33 の露光機よりも高出力 EUV 光源が求められている [1]。高出力化の一手法として CO₂ レーザーの出力向上があるが、消費電力や電極消耗の課題から長時間運転が困難である。このため、EUV 変換効率の向上が有効な解決策となり、この研究を進めるためには、液体 Sn ターゲットと CO₂ レーザーが必要である。最近、EUV 変換効率の CO₂ レーザーのパルス幅依存性については短い方がよい [2] のと長い方がよい [3] に分かれた解析がある。そこで、われわれは CO₂ レーザーのパルス幅とともに EUV スペクトルや変換効率を明らかにしていきたいと考えている。このため、われわれは実験室向けの低コスト液体 Sn ターゲット供給装置を開発し、図 1 に示すパルス幅を調整可能な CO₂ レーザーと組み合わせて EUV 発生実験をおこなった。CO₂ レーザーの発振器は直線型共振器とした。CO₂ レーザーのパルス幅を 15 – 140 ns で変化できるようにした。その後、パルススライスと予備増幅、主増幅を経て、Sn 液体ターゲットに集光照射した。

図 2 は CO₂ レーザーのパルス幅を 20 ns と 140 ns にしたときの規格化された時間積分 EUV スペクトルの比較である。ここで、灰色の帯は EUV 帯域幅 (13.5 nm ± 1%) である。CO₂ レーザーのパルス幅が 20 ns のとき、140 ns のときよりもスペクトルの幅は狭まり、長波長領域の帯域外放射が抑えられることが観測された。

- [1] Q. Zhu *et al.*, Proc. SPIE **13424**, 134240Y (2025).
- [2] A. Sunahara *et al.*, Opt. Express **31**, 31780 (2023).
- [3] J. Gonzalez and J. Sheil, Phys. Plasmas **31**, 050701 (2024).

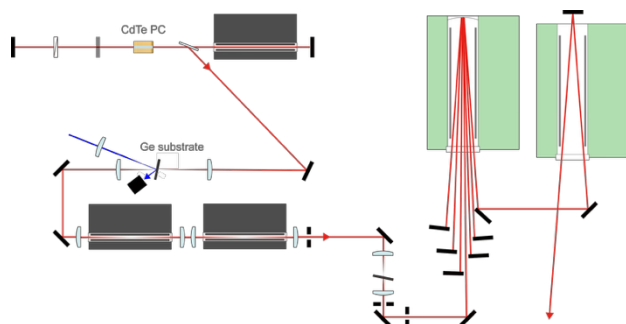


Fig.1. CO₂ laser system.

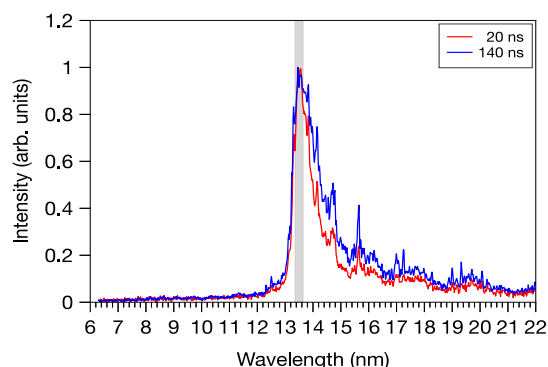


Fig. 2. EUV spectral comparison at 20 and 140 ns.

ナノテラス BL09W におけるマルチビームX線イメージング

Multi-Beam X-ray Imaging at NanoTerasu BL09W

東北大国際放射光セ¹, 東北大多元研², 東大院工物工³, 東北大院ファイン⁴, 東北大院歯⁵,

東京学芸大教育⁶, 産総研計量標準セ⁷, 筑波大システム情報⁸

○矢代 航^{1,2,3,4,5}, 上田 亮介¹, 亀沢 知夏², 住石 海希⁴, 祖山 均⁴,

フォグリ ヴォルフガング⁶, 白澤 徹郎⁷, 工藤 博幸^{1,8}

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

Grad. Dentistry, Tohoku Univ.⁵, Edu., Tokyo Gakugei Univ.⁶, NMIJ, AIST⁷,

Info. & Sys., Univ. Tsukuba⁸

○Wataru Yashiro^{1,2,3,4,5}, Ryosuke Ueda¹, Chika Kamezawa², Hiroki Sumiishi⁴, Hitoshi Soyama⁴,

Wolfgang Voegeli⁶, Tetsuroh Shirasawa⁷, Hiroyuki Kudo^{1,8}

E-mail: wyashiro@tohoku.ac.jp

我々は、シンクロトロン放射光のマルチビーム化という、世界的に類のない独創的な着想に基づいて、試料を回転することなく、世界最高である 0.5 ミリ秒時間分解能の 4D-X 線マイクロトモグラフィ (4D : 3D+時間) の原理実証に成功した[1]。試料の高速回転による X 線トモグラフィについては著者らによって数ミリ秒時間分解能まで実現できていたが[2-5]、1 ミリ秒時間分解能を超える X 線トモグラフィには、3 万 rpm 以上の試料高速回転が必要で、本研究の独創的な着想が不可欠であった。

筆者らが開発した光学系では、試料の回転が必要ないため、遠心力で決まる時間分解能の限界を打破できるだけでなく、流動性のある試料や、生きた生物への適用も可能であり、一期一会の非繰り返し・非平衡現象を前人未踏の時間分解能で 4D 可視化できる。例えば、材料破壊、マイクロ流体、機械加工、摩耗、溶接、燃焼、動的バイオミメティクスなど、観察対象は多岐にわたり、非平衡系マテリアルズインフォマティクスなどの新たな学術分野の創成から産業応用に至る様々な波及効果が期待される。本発表では、3 GeV 高輝度放射光施設 NanoTerasu のマルチポールウィグラービームラインである BL09 のオープンスペースにマルチビーム光学系を設置して実験した結果について報告する。

[1] X. Liang, W. Voegeli, H. Kudo, E. Arakawa, T. Shirasawa, K. Kajiwara, T. Abukawa, and W. Yashiro, *Appl. Phys. Express* **16** (2023) 072001.

[2] W. Yashiro, D. Noda, and K. Kajiwara, *Appl. Phys. Express* **10** (2017) 052501.

[3] W. Yashiro, R. Ueda, K. Kajiwara, D. Noda, and H. Kudo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** (2017) 112503.

[4] W. Yashiro, C. Kamezawa, D. Noda, and K. Kajiwara, *Appl. Phys. Express* **11** (2018) 122501.

[5] R. Mashita, W. Yashiro, D. Kaneko, Y. Bito, and H. Kishimoto, *J. Synchrotron Rad.* **28** (2021) 322.

2次元X線検出器を用いた希薄濃度試料に対する 迅速蛍光 XAFS 計測

Fast fluorescence mode XAFS measurement using two-dimensional X-ray detector for dilute samples

京大人環¹, 高輝度セ², リガクX研³, FC-Cubic⁴ ○宇留賀 朋哉^{1,2}, 金子 拓真¹,
井上 朋直³, 作村 拓人³, 今井 英人^{1,4}, 内本 喜晴¹

Kyoto Univ.¹, JASRI², RIGAKU³, FC-Cubic⁴ ○Tomoya Uruga^{1,2}, Takuma Kaneko¹,
Tomonao Inoue³, Takuto Sakumura³, Hideto Imai^{1,4}, Yoshiharu Uchimoto¹

E-mail: urugat@spring8.or.jp

XAFS 法は、試料内に含まれる測定目的元素の X 線吸収スペクトルを計測することにより、化学状態や局所構造情報を結晶・非結晶に関わらず元素選択に得ることができる強力な分析手法である。希薄試料に対する XAFS 計測は、試料からの蛍光 X 線を検出する蛍光 XAFS 法が用いられる。我々は、希薄試料に対し迅速な蛍光 XAFS 計測を実現する計測システムの開発を進めている。本報告では、蛍光法 XAFS 計測検出器として 2 次元 X 線検出器 XSPA-400ER (リガク) [1]を用いて行った迅速蛍光 XAFS 評価実験の結果について報告を行う。

XSPA-400ER は、検出素子: Si (320 μm 厚)、ピクセルサイズ: $75 \times 75 \mu\text{m}$ 、ピクセル数: 65 k、最高読出しフレームレート: 1.2 kfps で、最高エネルギー分解能: 340 eV @ 8 keV をもつ点に大きな特徴がある。評価実験は、SPring-8 BL36XU [2]にて実施した。XAFS 計測は、テーパアンジュレータ光を用い、Si(111)チャネルカット結晶分光器の連続角度走査による QXAFS 計測により、*ex-situ* 条件下で行った (Fig.1)。評価実験の結果、XSPA-400ER を用いることにより、極希薄試料 (Pt/C ナノ粒子ペレット、 $\Delta\mu\text{t} = 0.001$) に対し、迅速な EXAFS 計測 (計測時間: 80 s) が可能であることが判明した。また、XSPA-400ER のエネルギー分解性能を利用し、試料からの回折線による妨害バックグラウンド等を除去することができ、質の高い XAFS スペクトルの計測が可能であることがわかった。

発表では、計測システムの概要と実験結果の詳細について報告する。

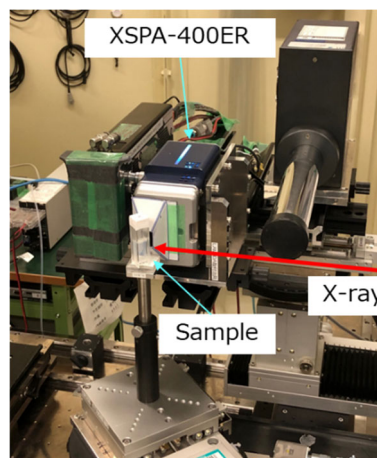


Fig.1 Layout of fluorescence mode XAFS measurement system.

[1] <https://rigaku.com/ja/products/components/detectors/xspa-400-er>

[2] T. Uruga et al., *Chem. Record*, **19**, 1444 (2019).

40 keV 励起硬 X 線光電子分光法の開発

Development of high-energy hard X-ray photoelectron spectroscopy excited by photon energy up to 40 keV

(公財)高輝度光科学研究センター ○安野 聡, 西原 達平, Seo Okkyun, 高木 康多

JASRI ○Satoshi Yasuno, Tappei Nishihara, Okkyun Seo, Yasumasa Takagi

E-mail: yasuno@spring8.or.jp

硬 X 線光電子分光法(HAXPES)は従来の XPS に比べて深い分析深さを有し、近年様々な研究分野において深部(バルクや界面)における非破壊電子状態分析手法としての応用が進んでいる。一方で現状(~10 keV 励起)では分析深さが数十 nm 程度に限られるため、分析深さの不足から実際のデバイス構造や材料をそのまま分析することが難しいケースがある。このため、我々は HAXPES の分析深さをさらに向上させるべく、従来よりも高い運動エネルギーの光電子の計測が可能な高エネルギー(30~40 keV)励起 HAXPES の開発に取り組んでいる[1]。本技術開発によって、材料によっては数百 nm 程度に分析深さが向上し、実際のデバイスや実材料に近い構造の評価が可能になる事が期待される。本技術では、高い運動エネルギーの光電子スペクトルを計測するため、試料ステージに外部電圧を印加し、光電子を適切なエネルギー領域まで減速し相対的にエネルギー範囲をシフトした光電子群と既存のアナライザーを組み合わせた 2 段階方式によるエネルギー制御技術を用いている(Fig. 1)。Fig. 2 に励起 X 線エネルギー10~40 keV で測定した SiO₂(200nm)/Si 基板の Si1s スペクトルの測定結果を示す。10 及び 20 keV 励起では、1840 eV 近傍に出現する SiO₂ 膜下の Si 基板からのシグナルは微弱でほとんど確認できないが、30 及び 40 keV 励起では明確に Si 基板由来のシグナルが確認できる。励起 X 線エネルギーが高くなる (即ち分析深さが大きくなる) ほどピーク強度が増大していることが分かる。一方で、酸化物由来のシグナルで顕著なピークブロードニングの他、光イオン化断面積の減少に伴う収量低下等の課題がある。当日は他の多層膜構造試料の応用事例や本技術の実用化へ向けた課題等についても報告する予定である。

謝辞：本研究は JSPS 科研費 JP22K04210 の助成を受けて実施されたものである。

参考文献：[1] S. Yasuno, O. Seo, Y. Takagi and T. Nishihara, Rev. Sci. Instrum, **94**,115113 (2023)

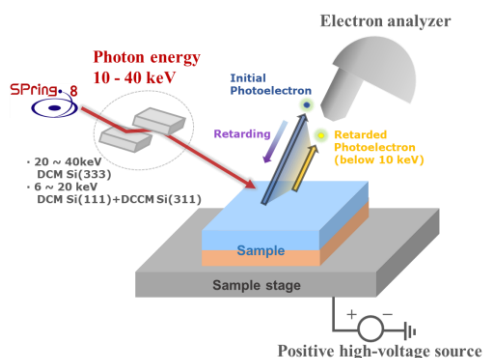


Fig. 1. Schematic image of the experimental setup of HE-HAXPES system with an applied bias voltage positively.

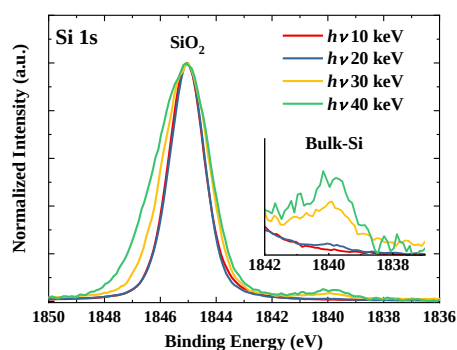


Fig. 2. Si 1s spectra of 200-nm-thick SiO₂ film/Si substrate measured at photon energies from 10 to 40 keV.

EUV 多層膜ミラー用の化学エッチング自動化装置の開発**Development of Automated Chemical Etching Machine for EUV Multilayer Mirrors****東京工芸大工 〇(M1) 柴田 涼平, 緒形 凜久、中込 由美恵、豊田 光紀****Tokyo Polytechnic Univ., 〇Ryohei SHIBATA, Riku OGATA, Yumie NAKAGOME,****Mitsunori TOYODA****E-mail: m2562003@st.t-kougei.ac.jp**

光子エネルギー40eV から 500eV の極紫外線(EUV)を用いる EUV 顕微鏡は、軽元素の内殻吸収で生じる元素コントラストを 10nm オーダーの回折限界分解能でビデオ観察する究極の光学顕微鏡として注目されている。Beyond EUV リソ応用、先端高分子材料や次世代半導体メモリなど、マイクロ-ナノ階層構造が生み出す機能を可視化する実用フェーズへの展開には、短波長化による空間分解能の向上(~10nm)と軽元素の内殻吸収端に合わせた観察エネルギーの拡張(ホウ素・炭素・水の窓:200-500eV、Fe 吸収端:700eV)が強く求められる。一方で、ミラー基板の形状誤差が主要因で生じる波面収差による像ボケで、回折限界結像は $E=40\text{-}100\text{eV}$ の低エネルギー領域に制限されている。我々は、化学エッチングにより Mo/Si 多層膜ミラー($E=92\text{eV}$)の反射率を保ったまま、多層膜構造を上部から1層ずつ除去する新手法を見いだした。多層膜エッチングでは、基板の表面研磨による従来手法と比べ制御感度を 1/100 に減速し精密に波面を制御できる。具体的には、初めに光学系で生じる波面収差を独自開発した 10pm 精度点回折干渉計で計測し波面補正量を算出する。これを基に、ミラー上に補正領域を制限するマスクをフォトレジストで作製する。その後、最上層の物質を選択的に化学エッチングすることで、波面収差を補正する。

本講演では、プロセス最適化の鍵となる自動エッチングマシン(Fig. 1)の開発について報告する。エッチングマシンは、ウェットエッチング槽、純水・超音波洗浄機、高速エリプソメータからなり、6軸マニピュレータ上の多層膜ミラー試料(直径1-4インチ)は、各構成部での姿勢・滞在時間を PC 制御により自在に制御することが可能となった。講演では、エッチング装置の動作確認として、Si ウエハに成膜した Si 単層膜のエッチング過程を計測した結果についても報告する。

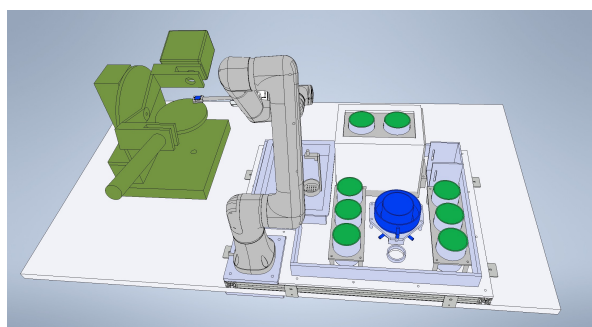


Fig.1. Schematic for Etching Machine for ML Mirrors.

謝辞：

本研究は JSPS 科研費・基盤研究(A)(課題番号 24H00434)の助成を受けたものです。

HAXPES を利用した基板上レジスト材料の EELS 測定

EELS Measurements of Resist Materials on a Substrate Utilizing HAXPES

兵庫県立大高度研¹, マツダ (株)² °鈴木 哲¹, 住田 弘祐²

LASTI, Univ. of Hyogo¹, Mazda Motor Corp.², °Satoru Suzuki¹, Hirosuke Sumida²

E-mail: ssuzuki@lasti.u-hyogo.ac.jp

【緒言】半導体デバイスの製造に極端紫外線リソグラフィー (EUVL) が用いられるようになっていく。更に Beyond EUVL (BEUVL) に向けたリソグラフィー関連技術の開発も進められている。これらの背景から、EUV 光に対して高い感度を持つレジスト材料の開発も非常に重要視されている。価電子帯の電子エネルギー損失分光 (EELS) は、試料の複素誘電関数 $\epsilon(E)$ とそのエネルギー E 依存性を求めることができる非常に強力な分析手法である。 $\epsilon(E)$ が求まれば、複素屈折率、吸収係数、反射率などの光学定数の E 依存性も知ることができる。EELS 測定は多くの場合、透過電子顕微鏡内で行われている。この場合、基板上の薄膜試料をそのまま分析することはできず、薄片化処理が必要となる。しかしレジストなどの有機材料は薄片化の際に変質してしまうことも懸念される。ところで硬 X 線光電子分光 (HAXPES) は、光電子の平均自由行程が数十 nm と大きいので、バルク敏感な光電子スペクトルが得られる手法である。本研究では、基板に塗布したレジスト材料の EELS を、基板から放出される光電子のレジスト内部での散乱を利用して求めることを試みた。

【実験】Si 基板にレジスト材料である ZEP520A をスピンコートにより塗布して試料とした。HAXPES/EELS 測定は SPring-8 のビームライン BL24XU に設置された HAXPES ステーションにて行った。励起光エネルギーは約 8 keV である。

【結果と考察】幾つかの膜厚の ZEP520A を塗布した Si 基板からの Si 1s HAXPES を図 1 に示す。塗布していない Si 基板 (0 nm) からは基板内部と表面の自然酸化膜 (SiO_2) の Si 1s ピークに加えて、Si のプラズモンなどの基板内で生じた非弾性散乱成分が高結合エネルギー側に観測されている。更に ZEP520A を塗布した試料からは、厚さに応じて ZEP520A 膜内で生じた非弾性散乱成分も重なっている。当日はこれらの光電子スペクトルからの ZEP520A 膜のエネルギー損失関数 $\text{Im}(-1/\epsilon(E))$ の導出、更に損失関数の Kramers–Kronig 解析による $\epsilon(E)$ とその他の光学定数の導出についても議論する予定である。

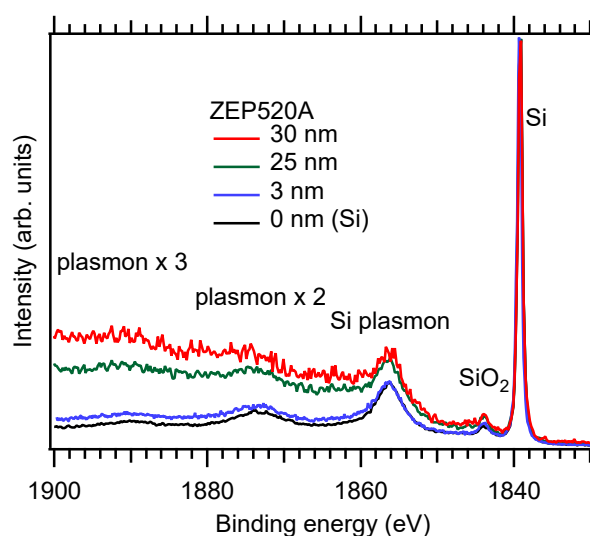


図1 ZEP520A/Si の Si 1s HAXPES とその非弾性散乱スペクトル。

電離圏プラズマ中の電子ビーム挙動のシミュレーション解析

Simulation study of electron beam behavior in ionospheric plasmas

阪公大院工, ○小林 太陽、田中 琉暉, 安田 雅昭

Dept. of Physics and Electronics, Osaka Met. Univ.

Taiyo Kobayashi, Ryuki Tanaka, Masaaki Yasuda

E-mail: yasuda.masaaki@omu.ac.jp

はじめに 近年、スペースデブリの増加が宇宙開発における問題となっており、除去するための様々な技術が検討されている。高エネルギーのレーザや荷電粒子ビーム照射によるアブレーションを推進力としたデブリの軌道変更もそのひとつである。しかし、荷電粒子ビーム照射の場合はデブリが存在する電離層プラズマ中におけるビームの減衰や散乱が問題となる。本研究では、電子ビームによるデブリ除去の可能性を検討するため、電子散乱のモンテカルロシミュレーションを用いて電離層プラズマ中の電子挙動の解析を行った。

シミュレーションモデル 電離層プラズマ中での電子散乱のシミュレーションモデルを Fig. 1 示す。電離層プラズマの主成分は中性酸素原子であり、照射電子と酸素原子および酸素イオンとの弾性衝突には Mott の散乱断面積を、プラズマ中の電子の励起には Moller の断面積を、また、酸素原子の衝撃電離には Vriens のイオン化断面積を使用した。本研究では衝撃電離によって生成された二次電子の軌跡については追跡しない。

解析結果 デブリが 100 km 離れた位置にあると想定し、その距離におけるビーム幅の酸素原子密度依存性を解析した結果が Fig. 2 である。照射電子の加速電圧は 10 kV で、照射時のビーム幅は 0 としている。また、中性酸素原子密度 $10^{15}[\text{m}^{-3}]$ の場合の軌跡を挿入図に示している。酸素原子密度が $10^{12}[\text{m}^{-3}]$ 以下ではビームの広がり抑制されていることが分かる。

謝辞 本研究は、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けたものである。

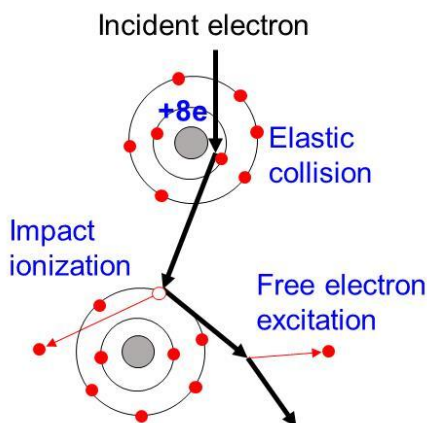


Fig.1: Simulation model of electron scattering in the ionospheric plasmas.

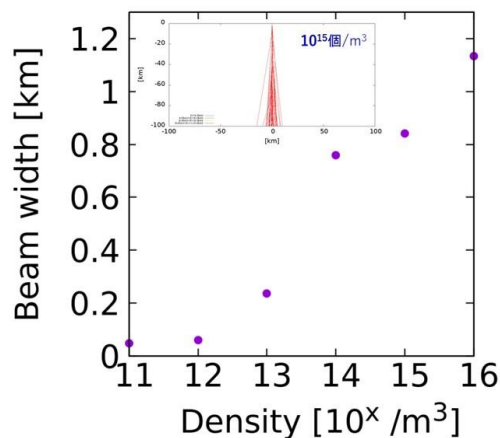


Fig.2: Beam width of a 10kV electron beam as a function of oxygen density at 100km in the ionospheric plasmas.

超低地球軌道（VLEO）衛星に対する中性大気環境地上対照試験

Ground-based simulation of neutral atmosphere for VLEO satellite

神戸大院工 [○]横田 久美子、上田 一輝、竹中 優太、田川 雅人

Kobe Univ., [○]Kumiko Yokota, Kazuki Ueda, Yuta Takenaka and Masahito Tagawa

E-mail: yokota@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、地上原子状酸素試験が可能な機関は国内では JAXA と神戸大のみであり、いずれもレーザーデトネーション方式による超熱原子ビームを用いている。しかしながら JAXA の装置は VLEO に対応した試験が不可能であることから、今後、利用の急速な拡大が予想される VLEO での原子状酸素環境試験は神戸大学でしか実施できないのが現状である。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。

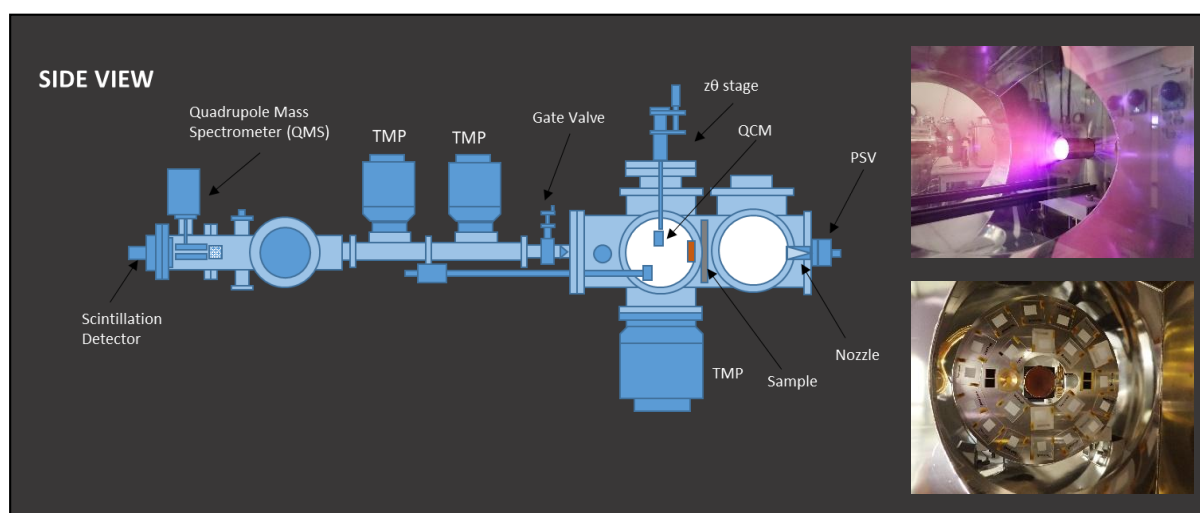


図1 原子状酸素照射実験装置（左）とレーザープラズマ（右上）およびサンプルホルダー（右下）

- [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

[10a-N403-1~10] 7.1 X線技術

[10a-N403-1]

Photon Factory BL-12A Sパスの600 eV以上の領域における分光器高次回折光の定量評価

○羽多野 忠^{1,2}、小池 雅人²、江島 丈雄^{1,2} (1.東北大SRIS、2.東北大多元研)

[10a-N403-2]

軟X線多層膜を付加し1~2keV領域で高回折効率を呈する平面結像型不等間隔溝球面ラミナー型回折格子の開発

○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、寺内 正己² (1.量研関西研、2.東北大多元研、3.大阪公大工)

[10a-N403-3]

斜め入射レーザーによるEUVスペクトルの高純度化

○矢澤 隼斗¹、山本 隼也¹、早坂 信太郎¹、杉浦 使¹、空本 龍弥¹、西宮 海人²、高橋 栄治²、難波 慎一³、東口 武史¹ (1.宇都宮大、2.理研RAP、3.広島大)

[10a-N403-4]

EUV露光光源用スズプラズマの空間・時間分解発光スペクトル計測

○(M2)篠田 樹¹、富田 健太郎¹ (1.北大工)

[10a-N403-5]

軟X線レーザー干渉顕微鏡用Schwarzschildミラーの開発(2)

○(M1)藤澤 悠太¹、樽松 哲也¹、石野 雅彦²、豊田 光紀¹ (1.東京工芸大工、2.量研関西研)

[10a-N403-6]

透過型EUV顕微鏡を用いた銀ナノ粒子の観察と透過シミュレーション

○(P)宇治 駿¹、S. Maidul Haque¹、豊田 光紀¹ (1.東京工芸大工)

[10a-N403-7]

緩慢凍結とクライオマイクロX線CTを組み合わせた細胞糖度センサーの開発

○米山 明男^{1,2}、河本 正秀¹、白仁田 和彦¹、安田 みどり³、馬場 理香²、児玉 龍彦⁴、竹谷 敏⁵ (1.SAGA LS、2.日立、3.西九州大学、4.佐賀県果樹試験場、5.産総研)

[10a-N403-8]

大視野で高速撮影が可能な動的X線エラストグラフィ装置の開発

○亀沢 知夏^{1,2}、上田 亮介³、生方 鈴之²、万里 悠斗²、米山 明男^{4,5}、兵藤 一行⁵、矢代 航^{1,2,3,6,7} (1.東北大多元研、2.東北大院ファイン、3.東北大国際放射光セ、4.佐賀LS、5.KEK物構研、6.東大院物工、7.東北大院歯)

[10a-N403-9]

高エネルギー放射光X線回折を用いたオペランド測定によるリチウムポリマー電池の負極構造変化解析

○長崎 有寿¹、鈴木 宏輔¹、宇都野 太²、山田 大貴³、宇佐美 輝¹、櫻井 浩¹ (1.群大理工、2.出光興産(株)、3.高輝度光科学研)

[10a-N403-10]

ナノ材料のマルチスケール観察に向けたXAS/SAXS同時観察法の開発

○白澤 徹郎¹、フォグリ ヴォルフガング²、荒川 悦雄² (1.産総研、2.東京学芸大)

Photon Factory BL-12A S パスの 600 eV 以上の領域における 分光器高次回折光の定量評価

Evaluation of high order diffraction of the grating monochromator of S-path at BL-12A,
the Photon Factory in a region above 600 eV

東北大 SRIS¹, 東北大多元研², °羽多野 忠^{1,2}, 小池 雅人², 江島 丈雄^{1,2}

SRIS, Tohoku Univ.¹, IMRAM, Tohoku Univ.², °Tadashi Hatano^{1,2}, Masato Koike², Takeo Ejima^{1,2}

E-mail: hatanotadashi@tohoku.ac.jp

Photon Factory では 2024 年 11 月に新しいビームライン BL-12A のユーザー共同利用が開始された[1]。このビームラインは回折格子分光器を備えた S パスと二結晶分光器を備えた T パスが並列に並ぶ、広波長域軟 X 線ビームラインである。S パスは斜入射角 1.5°以下のミラーで構成されて 2 keV までカバーし、エネルギー領域の切れ目なく T パスとつながる。一方で、エンドステーションに導かれるビームに高次回折光が多く含まれる懸念がある。

我々はこれまで多層膜ミラーの分光特性を利用して回折格子分光器の高次光の評価を行ってきた^{2,3}。今回は周期膜厚 1.88 nm の Mo/C 多層膜を使用して 600 eV 以上の領域で評価を実施した。高次光の影響がないと考えられる 1200–2000 eV で反射率を測定し、同じ角度領域で分光器の設定を 600–1000 eV に移動して高次光信号を検出した。検出器には Al 250 nm コート付きフォトダイオードを使用した。測定結果の一部を Fig. 1 に示す。図中のエネルギーと“*m*”はそれぞれ分光器の設定エネルギーと分光器の回折次数を示す。定量分析の結果、600 eV では 2 次光が 25% 含まれることなどがわかった。3 次光は 600 eV で 0.3%含まれるのみであった。これらの結果を同じ検出器を用いて行う今後の実験の測定値補正に利用する。

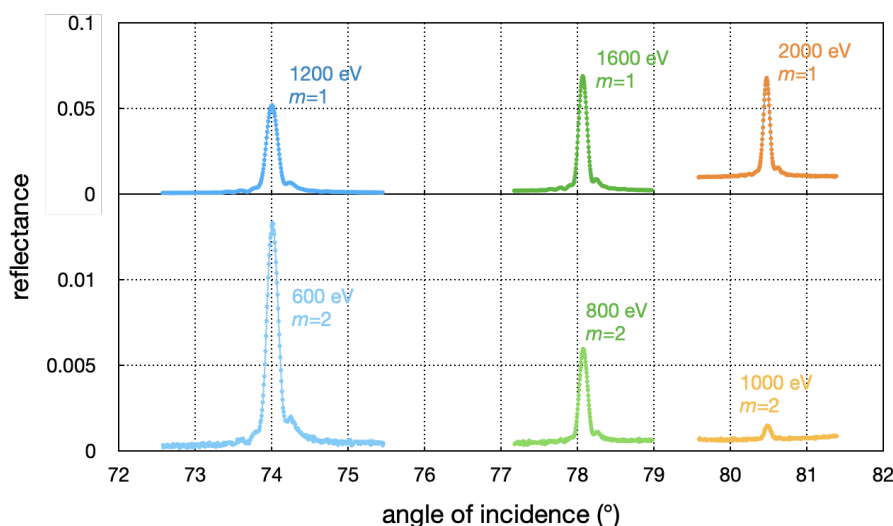


Fig.1 Reflectance of a Mo/C multilayer measured at BL-12A, PF.

[1] T. Ohgashi et al., doi=10.14293/APMC13-2025-0138

[2] 羽多野他, 2014 年第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 19p-A13-12.

[3] 羽多野, 2017 年第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 5a-S44-3.

軟 X 線多層膜を付加し 1~2keV 領域で高回折効率を呈する平面結像型 不等間隔溝球面ラミナー型回折格子の開発

Development of flat-field spherical laminar-type varied-line-spacing diffraction grating
coated with soft X-ray multilayer to attain high-diffraction-efficiency
in the 1-2 keV region

量研関西研¹、東北大多元研²、大阪公大院工³

○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、寺内正己²

KPSI, QST¹, IMRAM, Tohoku Univ.², Dept. of Eng., Osaka Metropolitan Univ.³

○Masato Koike^{1,2}, Tadashi Hatano², Alexander S. Pirozhkov¹, Masami Terauchi²

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

1~2 keV 領域で高回折効率を呈する軟 X 線多層膜を付加した平面結像型不等間隔溝球面ラミナー型回折格子を前回報告[1]した設計に従い製作し、回折効率を評価したので報告する。刻線密度 $1/\sigma$ を 2400 本/mm と仮定した設計の結果、最適な溝構造は、溝深さ h が 2.65 nm、デューティ比 a/σ が 0.46 で、入射角 α は 87.50° となった。SiO₂ 基板の上にラミナー型回折格子溝を刻線した表面上に不等周期の W/B₄C 多層膜を積層し、更にその上に Au 膜を積層することとした (Fig.1 参照)。W 層の膜厚, d_{Hi} , $i = 1 \sim 6$, は全て 2.6 nm, B₄C の膜厚 d_{Li} , $i = 1 \sim 4$, は 3.0 nm, d_{L5} と d_{L6} はそれぞれ 10.3 nm, 4.7 nm である。また、最上層の Au 膜の膜厚, d_{H7} , は 4.0 nm である。この膜構造により、低エネルギー光は最上層の Au 膜で、高エネルギー光は多層膜で主に回折されることになる。Fig.2 は放射光を用いて測定した多層膜回折格子の回折効率と、最上層の Au の厚さ d_{H7} が 3.5~6.0 nm と仮定した多層膜回折格子と Au 回折格子の計算で得た回折効率のエネルギー依存性の比較を示す。この図から 1~2 keV 領域において、多層膜回折格子の実験値は Au 回折格子の計算値との比較で約 2 倍の高い回折効率を示していることが判る。なお、実験結果に現れる高エネルギー側での回折効率の低下は、実際の d_{H7} の値が設計値より厚い~5.0 nm となっていた可能性を示唆している。

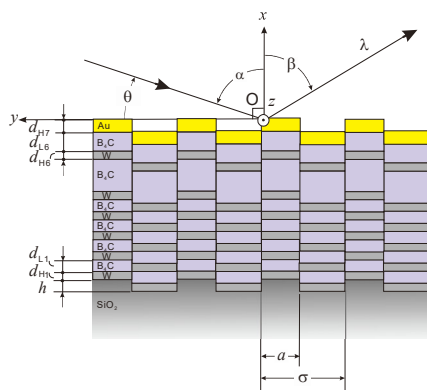


Fig.1 Schematic diagram of soft X-ray multilayer laminar-type grating.

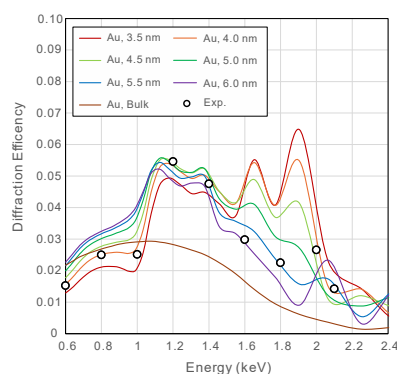


Fig.2 Diffraction efficiencies of measured multilayer grating (circles) and calculated multilayer gratings having top Au layer of $d_{H7} = 3.5 \sim 6.0$ nm as well as Au coated grating (curves) at an incidence angle of 87.5° .

[1] 小池他, 第69回応用物理学会春季学術講演会, 24a-E101-1 (2022).

斜め入射レーザーによる EUV スペクトルの高純度化

High EUV spectral purity by oblique laser incidence

宇都宮大学¹, 理研 RAP², 広島大学³

○(M2) 矢澤 隼斗¹, (M1) 山本 隼也¹, (M1) 早坂 信太郎¹, 杉浦 使¹, 空本 龍弥¹,

西宮 海人², 高橋 栄治², 難波 慎一³, 東口 武史¹

¹Utsunomiya Univ.¹, Riken RAP², Hiroshima Univ.³, ○(M2) Hayato Yazawa¹,

(M1) Shunya Yamamoto¹, (M1) Shintaro Hayasaka¹, Tsukasa Sugiura¹, Tatsuya Soramoto¹,

Kaito Nishimiya², Eiji J. Takahashi², Shinichi Namba³, and Takeshi Higashiguchi¹

E-mail: hayato.yazawa0128@gmail.com

先端半導体露光用の EUV 光源の消費電力削減をめざし、励起レーザーを電気 - 光変換効率が相対的によい固体レーザーに替えることが提案されている。固体レーザーの候補波長のひとつの $\lambda_L = 2 \mu\text{m}$ レーザー生成プラズマ EUV 変換効率が 4.6%であることが報告された [1]。さらに、レーザー波長を $\lambda_L = 3 - 5 \mu\text{m}$ の長波長レーザーにすることでさらに高い変換効率が得られる可能性も示唆されている [2]。レーザー波長によるプラズマ密度の制御が重要である。高密度プラズマでは光学的に厚く、EUV 光はプラズマに再吸収され、帯域外放射も増加する。プラズマ密度を低下させるにはプラズマの臨界密度 ($n_c \propto 1/\lambda_L^2$) を下げることが有効で、スペクトル純度を高くすることができる。本研究では、ターゲット表面に対してレーザーを斜めに照射すると実効臨界密度 ($n_c^* = n_c \cos^2\theta$) を下げることができる。そこで、 $\lambda_L = 3 - 5 \mu\text{m}$ の長波長レーザーに対応する臨界密度での EUV スペクトルを観測した。

図 1 は観測された EUV スペクトルである。 $\lambda_L = 1 \mu\text{m}$ のレーザーを $\theta = 60^\circ$ で入射すると、実効臨界密度は $\lambda_L = 2 \mu\text{m}$ のレーザーを $\theta = 0^\circ$ で入射したときの EUV スペクトルと同じであった。($\lambda_L = 1 \mu\text{m}$ でのスペクトルには、酸素の輝線が重畳している。) 図 2 は $\lambda_L = 1 \mu\text{m}$ と $2 \mu\text{m}$ のレーザーを斜め入射したときのスペクトル純度 (SP) である。ここで、スペクトル純度は $6 - 22 \text{ nm}$ の発光に対する $13.5 \text{ nm} \pm 1\%$ 発光比とした。入射角を大きくすることで SP は向上した。本研究の一部は、住友財団および理化学研究所 TRIP (先端半導体技術開発) の研究助成により行われた。

[1] Y. Mostafa *et al.*, Appl. Phys. Lett. **123**, 234101 (2023).

[2] D. J. Hemminga *et al.*, Phys. Plasmas **30**, 033301 (2023).

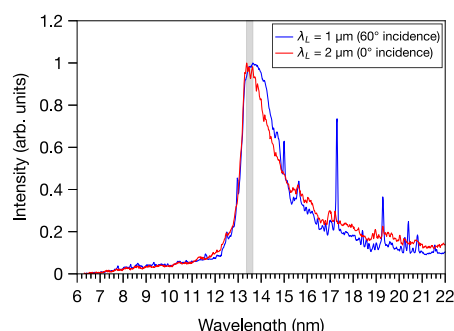


Fig. 1. Time-integrated EUV spectra.

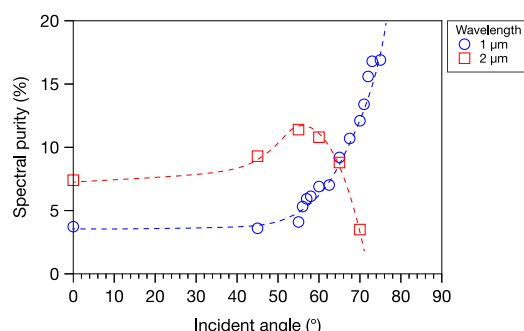


Fig. 2. Incident angle dependence of spectral purity (SP).

EUV 露光光源用スズプラズマの空間・時間分解発光スペクトル計測

Measurement of Space and Time Resolved Radiance Spectra of Tin Plasma for EUV Light Source

北大工 〇(M2) 篠田 樹, 富田 健太郎

Hokkaido Univ. 〇Itsuki Shinoda, Kentaro Tomita

E-mail: shinoda.itsuki.m1@elms.hokudai.ac.jp

AI 技術等の発展により更なる高度情報化が進む現代において、膨大な計算処理の中核を担う高性能半導体の需要は留まるところを知らない。ムーアの法則に示されるように、半導体は時代とともに高集積化、高性能化を続けてきた。これを支えるのが光によって回路を縮小転写する光リソグラフィ技術である。その最先端がスズプラズマを光源とする EUV 露光技術であるが、多大な電力消費から持続可能性に問題を抱えており、光源の改良が必須である。新たな光源開発にあたりプラズマの生成条件を決定する上で、対象とするプラズマの詳細な物理的理解が欠かせない。本研究では、プラズマに対し空間的・時間的に分解した発光スペクトル計測と、独自技術による電子温度・密度計測を複合することで、プラズマの内部パラメータと発光の関係について考察する。

軟 X 線レーザー干渉顕微鏡用 Schwarzschild ミラーの開発(2)

Schwarzschild Objective for Interference Microscopy in Soft-X-Ray Region (2)

東京工芸大工 °(M1) 藤澤悠太, 樽松哲也, 豊田光紀

量研関西研 石野雅彦

Tokyo Polytechnic Univ., °Yuta FUJISAWA, Tetsuya KUREMATSU, Mitsunori TOYODA.

QST, Masahiko ISHINO.

E-mail: m2562005@st.t-kougei.ac.jp

我々は高強度パルスレーザーによるアブレーションで発生する物質表面の損傷構造の形成過程を 100 ナノメートルスケールの空間分解能と 100 フェムト秒以下の時間分解能で可視化する軟 X 線レーザー干渉顕微鏡を開発している[1]。開発中の顕微鏡システムの動作波長 13.9nm では Bragg 反射によって直入射で高い反射率を実現する多層膜ミラーを用いる必要がある。本講演では波長 13.9nm で回折限界結像を提供する Schwarzschild ミラー[2]の開発のうち、凹面ミラー基板への Mo/Si 多層膜コート成膜について報告する。

凹面ミラーの全面で Bragg 反射による高反射率を得るには、ミラー上の光線座標で変化する入射角に対して周期長を制御する必要がある。開発中の Schwarzschild ミラー(焦点距離 $f=20\text{mm}$, 開口数 $NA=0.25$)での入射角および周期長の変化を Fig. 1 に示す。多層膜コートの成膜は、遮蔽板と公転速度変調を組み合わせた周期長分布制御機構付きのマグネトロンスパッタ装置を用いた。凹面に変形させたカプトンフィルム(三菱ガス化学ネオプリム)上への予備成膜を繰り返し、成膜条件を最適化した後に MRF 研磨した凹面ミラー基板(石英ガラス製)に本成膜した。EUV 反射率スペクトルの確認には、実験室 LPP 光源反射率計[3]を用いた。ミラー基板上的複数箇所で計測を行い、Mo/Si 多層膜構造の周期長分布を評価した(Fig. 2)。本講演では、凹面基板への周期長分布制御と本成膜の結果、および、それに続く凸面基板への周期長分布の制御の現状について報告する。

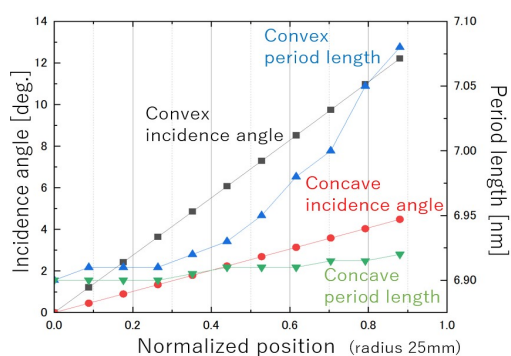


Fig. 1. Red and Black curves: angle of incidence vs. ray position on the mirror substrates. Blue and Green curves: period length yielding maximum reflectivity at $\lambda=13.9\text{ nm}$.

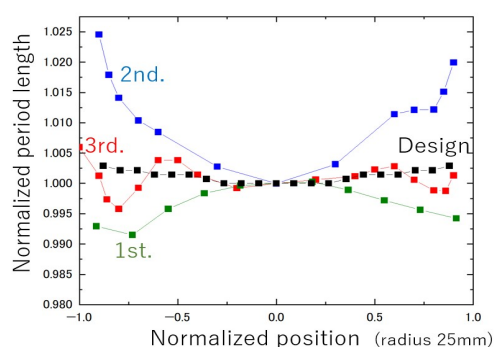


Fig. 2. Period vs ray position on the concave mirror.

References:

- [1] 藤澤悠太, 樽松哲也, 石野雅彦, 豊田光紀. 「軟 X 線レーザー干渉顕微鏡用 Schwarzschild ミラーの開発」. 第 72 回応用物理学会春季学術講演会. 14a-P02-1. (2025).
- [2] P. Erdős: J. Opt. Soc. Amer. **49** (1959) 877-886.
- [3] Shigeru Nakayama *et al.* Phys. Scr. **41** (1990) 754.

謝辞: 本研究は JSPS 科研費(課題番号 24H00434, 23H01884, 23K26577)の助成を受けたものです。

透過型 EUV 顕微鏡を用いた銀ナノ粒子の観察と透過シミュレーション Observation of Silver Nanoparticles Using a Transmission EUV Microscope and Transmission Simulation

東京工芸大工¹ ○宇治 駿¹, S. Maidul Haque¹, 豊田 光紀¹

Tokyo Polytechnic Univ.¹ ○Shun Uji¹, S. Maidul Haque¹, Mitsunori Toyoda¹

E-mail: s.uji@eng.t-kougei.ac.jp

波長 3-30 nm 程度の極紫外線域の光 (Extreme Ultraviolet, EUV) は、数十 nm の高空間分解能に加え、内殻吸収端近傍の波長を適切に選ぶことで、大きな吸収断面積と実用的なコントラストを実現する次世代型光学顕微鏡として期待されている。¹⁾ 特に、原子番号 1-20 程度の軽元素の内殻吸収端が EUV 領域に存在するため、低電子密度原子の二次元分布を染色なく可視化できる。²⁾

しかしながら、EUV 顕微鏡はその複雑さ故にほとんど普及しておらず、未だ観察サンプル数が不足している。そこで我々は高い EUV 吸収性と還元法において様々なサイズや形状の合成方法が確立されている銀ナノ粒子に着目した。本研究では、EUV 領域の透過シミュレーションや、従来の形態観察法である走査型電子顕微鏡 (SEM) 像と比較することで、理論・実験の整合性を担保すると共に、EUV 顕微鏡の観察特性を明らかにする。

本研究では特に、数 nm レベルで厚さを制御可能な銀ナノプレートを観察対象として選出した。

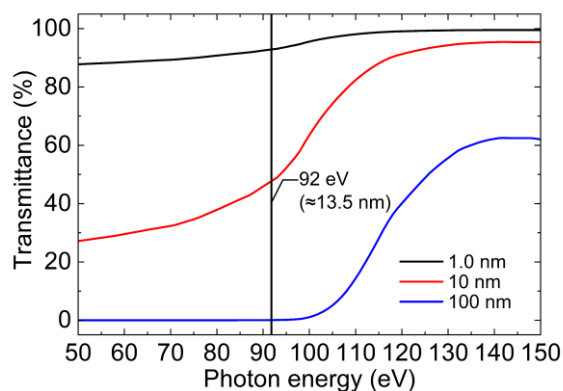


Fig. 1 EUV transmission spectra of silver nanoplates with various thicknesses.³⁾

Fig. 1 にナノプレートの厚みに対する透過スペクトルの関係を計算した結果を示す。EUV 顕微鏡で用いる 92 eV (≈13.5 nm) の透過率は 1.0 nm では約 93% であり、10 nm ではおよそ 48%、100 nm になるとほぼ 0% となった。ナノプレートの厚みと 92 eV の光の透過率の関係を Fig. 2 に示す。透過率の対数と厚みは消衰係数を傾きとする線形関係をとる。開発中の EUV 顕微鏡の開口数は約 0.25 であり、この時の焦点深度は 120 nm となることから、ナノプレートの観察像自体から厚み方向の情報を得ることは SEM 等の電子顕微鏡同様に困難である。しかし、EUV 透過率に関する情報を用いることで、透過率 1% 以上の厚み (-60 nm) であれば、ワンショットで焦点深度の 1/10 程度の厚みを簡便かつ定量的に算出可能であると期待できる。

本研究は、JSPS 科研費 (24H00434) の助成を受けたものである。

- 1). 豊田 光紀, 日本放射光学会誌, **35**, 6, 2022
- 2). M. Toyoda *et. al.*, *Appl. Phys. Express*, **13**, 8, 2020.
- 3). CXRO X-Ray Database (<https://henke.lbl.gov/>).

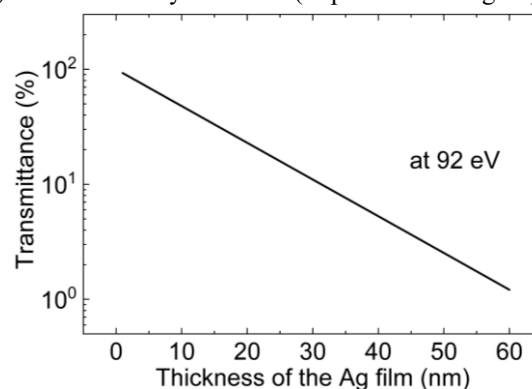


Fig. 2 Relationship with silver nanoplates thickness and EUV transmittance.³⁾

緩慢凍結とクライオマイクロ X 線 CT を組み合わせた 細胞糖度センサーの開発

Development of a cellular sugar concentration sensor by combining slow freezing
method with cryo-micro-X-ray CT

SAGA LS¹, 日立², 西九州大³, 佐賀県果樹試験場⁴, 産総研⁵, °米山 明男^{1,2}, 河本 正秀¹,
白仁田 和彦¹, 馬場 理香², 安田 みどり³, 児玉 龍彦⁴, 竹谷 敏⁵

SAGA LS¹, Hitachi², Nishi-kyushu Univ.³, Saga Fruit Tree Experiment Station⁴, AIST⁵,
°Akio Yoneyama^{1,2}, Masahide Kawamoto¹, Kazuhiko Shiranita¹, Rika Baba², Midori Yasuda³,
Tatsuhiko Kodama⁴, Satoshi Takeya⁵

E-mail: yoneyama@saga-ls.jp

緩慢凍結法とクライオマイクロ X 線 CT を組み合わせることで、個々の植物細胞内の糖度を検出可能な「細胞糖度センサー」を新たに開発した[1]。本センサーでは、緩慢凍結により析出されたフルクトース等の糖類が形成する模様が、図 1 に示すように糖度と関連することを利用し、各植物細胞内の糖度を検出する。原理検証として、SAGA LS BL07 の放射光クライオマイクロ X 線 CT[2]を用いて、糖度の異なる梨を緩慢凍結して観察した。そして、取得した CT 像に現れた模様を、ストライプ状(A)と砂状(B)の 2 種類に分類し、その比 ($r_A=B/A$) と、予め従来の糖度センサーで計測した糖度と比較した。この結果、図 2 に示すような関係が得られ、形成された模様 (r_A) から細胞ごとの糖度を検出できることを確認した。今後は機械学習と組み合わせて精度の向上を図るとともに、さまざまな果物での検証を進める予定である。

[1] A. Yoneyama, et al., Sci. Rep. submitted.

[2] A. Yoneyama, et al., J. Sync. Rad., 28, 1966(2021)

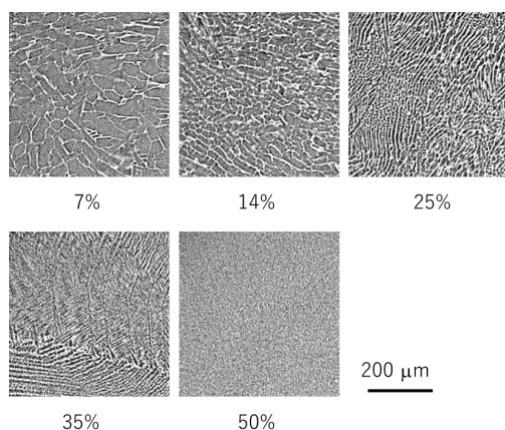


図 1 各濃度のフルクトース溶液を緩慢凍結した結果

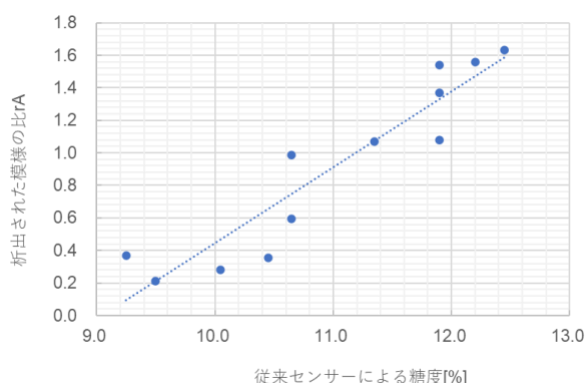


図 2 梨を対象とした従来センサーによる糖度と模様の比(r_A)の関係

大視野で高速撮影が可能な動的 X 線エラストグラフィ装置の開発

Development of a large field dynamic X-ray elastography system with high-speed imaging

東北大多元研¹, 東北大院ファイン², 東北大国際放射光セ³, 佐賀 LS⁴,

KEK 物構研⁵, 東大院物工⁶, 東北大院歯⁷,

○亀沢 知夏^{1,2}, 上田 亮介³, (M1)生方 鈴乃², (M1)万里 悠斗²,

米山 明男^{4,5}, 兵藤 一行⁵, 矢代 航^{1,2,3,6,7}

IMRAM, Tohoku Univ.¹, Grad. Eng., Tohoku Univ.², SRIS, Tohoku Univ.³, Saga-LS⁴,

IMSS, KEK⁵, Grad. Eng., Univ. Tokyo⁶, Grad. Dentistry, Tohoku Univ.⁷

○Chika Kamezawa^{1,2}, Ryosuke Ueda³, Rinno Ubukata², Yuto Manri²,

Akio Yoneyama^{4,5}, Kazuyuki Hyodo⁵, Wataru Yashiro^{1,2,3,6,7}

E-mail: chika.kamezawa.d2@tohoku.ac.jp

X 線エラストグラフィは外力を与えたときの試料内部の挙動を X 線イメージングにより画像化し、非侵襲的に内部の弾性率分布を得る新しい画像化手法です。病変と硬さには関係があることが知られており、硬さの定量的な評価を行うため、すでに磁気共鳴 (MR) イメージングや超音波 (US) イメージングを用いて、病変部位の硬さを画像化するエラストグラフィは臨床現場で使用されていますが、本グループでは X 線イメージングを用いることで、より高い空間分解能で弾性率分布を得ることができ、病変の診断や材料の評価へ貢献できるイメージング手法となると期待して動的 X 線エラストグラフィの開発を進めています[1-3]。動的 X 線エラストグラフィを実現するためには数百 Hz 程度で外部から振動を与えたときの内部の挙動を画像化する必要があり、チョップパを用いてストロボ撮影を行うか、数千 fps 以上の撮影速度で高速撮影することが必要になります。また 3 次元情報を得るためには複数の投影方向からの情報が必要ですが、撮影中の試料の弾性率の変化を避けるためには短時間で撮影することが求められ、これらの条件かつ大きい試料を撮影するために広い視野を実現するためには、光学系の工夫が必要になります。

本発表では光学系の工夫と解析手法の工夫により、大視野で 3 次元 X 線エラストグラフィを実現する装置を開発している結果について報告します。

謝辞

本研究は、JSPS 科研費 (21K15837、24KJ0027、25K02596)、JST CREST (JPMJCR2335) 及び日本医学物理学会研究課題援助を受けたものです。ここに感謝の意を表します

- [1] C. Kamezawa, T. Numano, Y. Kawabata, H. Kanetaka, M. Furuya, K. Yokota, H. Kato, A. Yoneyama, K. Hyodo, and W. Yashiro, *Appl. Phys. Express*, 13(4), 042004, 2020.
- [2] C. Kamezawa, A. Cramer, W. Krull, W. Yashiro, K. Hyodo, and Rajiv Gupta, *Sci Rep* 11, 24128, 2021.
- [3] R. Nasukawa, C. Kamezawa, Y. Nakaye, Y. Sakuma, M. Kuribayashi, X. Liang, K. Hyodo, A. Yoneyama, W. Yashiro, *2024 CLEO-PR*, 1-5, 2024.

高エネルギー放射光 X 線回折を用いたオペランド測定による リチウムポリマー電池の負極構造変化解析

Operando measurement of anode structure change in lithium polymer batteries using high energy synchrotron radiation X-ray diffraction

群馬大学¹, 出光興産(株)², 高輝度光科学研究センター³, ○(M1)長崎 有寿¹,

鈴木 宏輔¹, 宇都野 太², 宇佐美 輝¹, 山田 大貴³, 櫻井 浩¹

Gunma Univ.¹, Idemitsu Kosan Co., Ltd², Japan Synchrotron Radiation Research Institute³,

○ Yuju Nagasaki¹, Kosuke Suzuki¹, Futoshi Utsuno², Hikaru Usami¹, Hiroki Yamada³,

Hiroshi Sakurai¹.

E-mail:t251f043@gunma-u.ac.jp

現在、リチウムイオン二次電池の容量や安全性、高速充放電特性に対する高性能化が求められている。リチウムイオン電池の負極材料には、主にグラファイトが使用され、充電によって正極からリチウムイオンがグラファイトの層間へ挿入されることで、ステージ構造と呼ばれる段階的な構造変化を経て LiC_6 構造になること、また放電時では逆の構造変化が起こることが報告されている[1]。しかしながら、実電池における電極材料の構造変化の詳細、とりわけ高速充放電時における構造変化の詳細の解明は電極の配置や材料、電解質の設計において一つの指針になる。本研究では、高エネルギー放射光 X 線回折法を用いて、実電池を充放電させながら、高い時間分解能で実電池負極の構造変化をオペランドで解析した。

試料は市販のリチウムポリマー電池(EEMB Co., ltd 製)を用いた。電池は正極層(LiCoO_2)、セパレータ、負極層(Graphite)、ゲル状の固体高分子ポリマー電解質からなる巻回構造である。実験は、大型放射光施設 SPring-8 の BL08W で行った。入射 X 線エネルギーは 115.18keV であった。本実験では充放電による電池の膨張・収縮の影響を排除するため、電極層の積層方向と X 線が平行となるように試料を配置した。試料から透過方向に回折される X 線のリングパターンを二次元検出器で 5 秒毎に測定し、リングパターンを散乱角ごとに積算することで一次元の回折パターンを得た。測定は 0.5C、1C、2C の充放電速度で行った。

得られた結果から、充電時は全ての充電速度でグラファイトから LiC_6 への連続的なステージ構造の変化が観測された。一方、放電時では 2 時間および 1 時間で完全放電になる放電速度(それぞれ、0.5C と 1C)において LiC_6 からグラファイトへの連続的なステージ構造の変化が観測されたのに対し、30 分で完全放電になる放電速度(2C)では不連続的なステージ構造変化が観測された。これらの結果は放電レートの違いによって負極構造の変化の仕方が異なることを示すため、電極の劣化過程の詳細な理解に資することが示唆される。詳細については当日報告する。

- [1] M. Wada, R. Hayashi, H. Ozono, T. Tsubota, Crystal structure analysis of lithium-ion batteries by operando X-ray diffraction, Surface, and Vacuum., Vol. 64, No. 5, pp.224-229 (2021)

ナノ材料のマルチスケール観察に向けた XAS/SAXS 同時観察法の開発

Simultaneous XAS/SAXS Technique for Multiscale Characterization of Nanomaterials

産総研¹, 東京学芸大² ○白澤 徹郎¹, Wolfgang Voegeli², 荒川 悦雄²

AIST¹, Tokyo Gakugei Univ.²

E-mail: t.shirasawa@aist.go.jp

分析対象が階層構造をもっていたり、複数の時間・空間スケールをまたいで進行する場合は、単一の分析法から得られる情報では全体像を捉えることが困難であり、複数の分析法の相補利用が有効になる。X 線吸収分光 (XAS) は注目元素の化学状態や局所原子スケール構造を、小角 X 線散乱 (SAXS) は粒子サイズや形状といったナノスケール構造を解析できるため、触媒や電池などの分析に広く相補利用されている。

本発表では、従来の逐次交互測定法より短時間で XAS および SAXS データを同時取得できる新しい手法を提案する。本手法では、エネルギー分散型 XAS 測定に利用される波長分散集束 X 線を用いることでエネルギースキャンを不要とし、1 つの 2 次元検出器で XAS スペクトルと SAXS 強度を同時に検出する“真の同時測定”を実現した。Pt 系の触媒ナノ粒子について、データ取得時間 0.1 秒で原子およびナノ構造情報の同時取得が可能であることを実証した[1]。これは従来報告[2]に比べて約 100 倍高速であり、ナノ材料などのマルチスケール・オペランド観察において有効な手段になる可能性を示している。

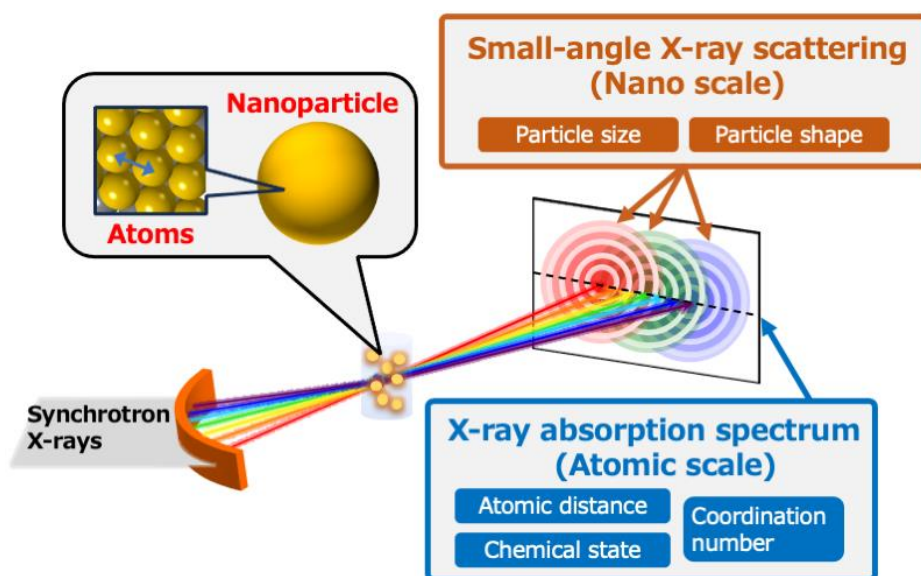


Fig. 1: Energy-dispersive XAS/SAXS for multimodal characterization of nanoparticles.

[1] T. Shirasawa, W. Voegeli, and E. Arakawa, *PCCP* **26**, 18493 (2024).

[2] Z. Wu et al., *Nano Research* **16**, 1123 (2023).

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

[9a-N403-1~11] 7.2 電子ビーム応用

[9a-N403-1]

2軸傾斜液体セルホルダーによる水-SrTiO₃界面の原子分解能STEM観察

○竹口 雅樹¹、橋本 綾子^{1,2} (1.NIMS、2.筑波大)

[9a-N403-2]

走査透過電子顕微鏡法によるLa-doped SrTiO₃の高温加熱その場観察

○小林 俊介¹ (1.ファインセラミックスセンター)

[9a-N403-3]

低真空二次電子検出器を用いた絶縁体孔構造のSEM観察

○姚 遠昭¹、澁谷 宗平¹、関口 隆史¹ (1.筑波大学数理)

[9a-N403-4]

SEMの反射電子エネルギーフィルターの製作と像演算によるバンドパス像の構築

○関口 隆史¹、姚 遠昭¹、柳原 悠人²、熊谷 和博^{1,3} (1.筑波大数理、2.光産業大、3.産総研)

[9a-N403-5]

SEM用全方位SE/BSE検出器の開発

○柳原 悠人¹、熊谷 和博^{2,3}、姚 遠昭²、関口 隆史² (1.光産業創成大学院大学、2.筑波大数理、3.産総研)

[9a-N403-6]

高繰り返しレーザーによる超高速時間分解SEMの高分解能化

○三浦 研介¹、岡本 ニコライ岳¹、吉田 昭二¹、藤田 淳一¹、嵐田 雄介¹ (1.筑波大数理)

[9a-N403-7]

超高速時間分解SEMを用いた金属-半導体界面における空乏層形状変化の可視化

○岡本 ニコライ 岳¹、三浦 研介¹、鄭 サムエル¹、吉田 昭二¹、藤田 淳一¹、嵐田 雄介¹ (1.筑波大数理)

[9a-N403-8]

走査電子顕微鏡の電子ビーム形状推定

○早田 康成¹、田中 満¹ (1.筑波大数理)

[9a-N403-9]

空間電荷効果を考慮した一般3次元境界電荷法の改良

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

[9a-N403-10]

電子源からの放出電子のランダムサンプリング

○岸田 一甫¹、早田 康成¹、村田 英一² (1.筑波大学数理、2.名城大理工)

[9a-N403-11]

ファセット電子源のクーロン効果シミュレーション

○里見 昂哉¹、早田 康成¹ (1.筑波大学数理)

2 軸傾斜液体セルホルダーによる水-SrTiO₃ 界面の原子分解能 STEM 観察 Atomic resolution STEM observation of water-SrTiO₃ interfaces with a double-tilt liquid cell holder

NIMS¹, 筑波大学² °竹口 雅樹¹, 橋本 綾子^{1,2}

NIMS, °Masaki Takeguchi and Ayako Hashimoto

E-mail: TAKEGUCHI.Masaki@nims.go.jp

水と酸化物表面における反応機構の理解は、薄膜成長のための清浄基板エッチング技術開発や光触媒・水分解触媒など触媒材料研究のために重要であり、原子レベルでの構造・組成変化のダイナミクスのその場観察が求められてきた。液体セル (LC) ADF-STEM (環状暗視野走査透過型電子顕微鏡) は、このような固体-液体界面を原子分解能で観察できる可能性を秘めているが、これまでその試みはなされてこなかった。それは、ADF-STEM は晶帯軸入射条件下で観察した場合にのみ単結晶試料の原子構造を分解できるのであるが、2軸傾斜機能を持つ液体セルホルダーが存在しなかったためである。そこで我々は独自に2軸傾斜液体セルホルダーを開発し、晶帯軸入射条件下で液体中の単結晶試料の原子分解能 ADF-STEM 像観察を可能とした。

本研究では約 100 nm の厚さの SrTiO₃ <001>ラメラ試料を、集束イオンビーム法を用いて作製した。Ga イオンビームによる LC チップの窒化シリコン (SiN_x) 窓膜の損傷を避けるため、ガラスプローブピックアップ法を用いて、空気中でこの試料を LC チップの SiN_x 窓膜上に転写した。LC チップは UV 照射によって親水化処理を行ったのち、マイクロインジェクターによって純水を滴下した。余分な水はマイクロインジェクターにより吸引し、ごく微量の水を残した状態で上から LC チップを被せ、蓋部材で固定した。その後、収差補正電子顕微鏡 JEM-ARM200F に挿入し、<001>晶帯軸入射条件に試料方位を合わせて ADF-STEM 観察を行った。図 1 は、SrTiO₃ サンプルのエッジ領域の原子分解能 ADF-STEM 像である。電子チャネリング効果により、Sr および Ti-O 原子カラムが明瞭に観察されていることが分かる。SrTiO₃ サンプル近傍の水の厚さを測定したところ、およそ 50nm であった。バルク構造とは異なる表面層の原子構造が出現していることが確認される。これは、SrTiO₃ サンプル表面が水と反応して SrO が水に溶解し、TiO_x になっていることを示唆している。

本研究の一部は、防衛装備庁安全保障技術研究推進制度_JPJ004596 の支援を受けたものである。

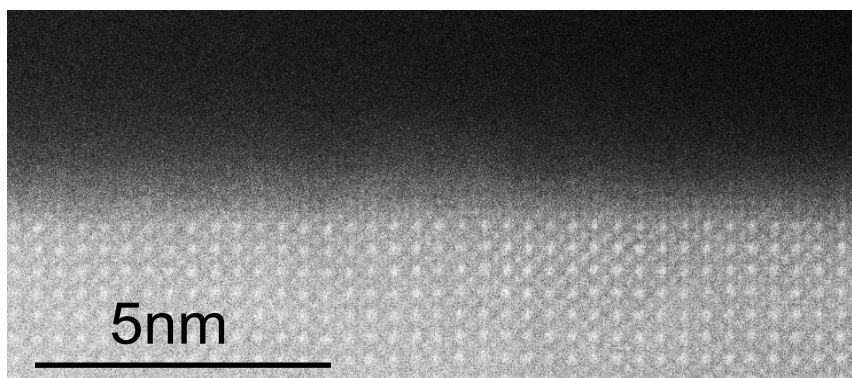


Fig.1 Atomic resolution LC-STEM image of a water-SrTiO₃ <001> interface.

走査透過電子顕微鏡法による La-doped SrTiO₃ の高温加熱その場観察

In-situ observation of La-doped SrTiO₃ under high temperature heating using atomic-resolution scanning transmission electron microscopy

ファインセラミックスセンター¹ ○小林俊介¹

Japan Fine Ceramics Center.¹, ° Shunsuke Kobayashi¹

E-mail: s_kobayashi@jfcc.or.jp

【緒言】

透過電子顕微鏡法を用いたその場観察技術は、材料が外部刺激下で示す構造変化を原子レベルで直接可視化できる手法として注目されている。近年、In-situ ホルダーの性能向上により 1000 °C を超える高温環境においても、セラミックス材料などの構造変化を原子分解能レベルで評価することができる。本研究では、ペロブスカイト型酸化物 SrTiO₃ をモデル材料として、1000 °C 以上の加熱条件下における構造変化を、走査型透過電子顕微鏡法 (STEM) を用いて原子分解能レベルでその場観察を実施した。

【実験方法】

試料には La を添加した SrTiO₃ 単結晶を使用した。走査型透過電子顕微鏡 (GrandARM2, JEOL) に加熱ホルダー (Lightning, DENS solutions) を組み合わせ、高真空 (〜5×10⁻⁶ Pa) 下で最大 1300 °C まで加熱し ADF-STEM 法によりその場観察を実施した。加熱後、電子エネルギー損失分光法 (EELS) を用いて、組成および価数状態を含む構造解析を行った。

【結果・考察】

La ドープ SrTiO₃ を 1200 °C まで加熱した結果、表面にはファセット構造の形成が観察されたが、結晶内部には顕著な構造変化は見られなかった。一方、1300 °C まで加熱を行うと、表面に SrTiO₃ とは異なる新たな結晶相が形成される様子が確認された。EELS 解析の結果、この表面に形成された相は岩塩型構造を持つ TiO であり、その周囲には La が局所的に残存していることが明らかとなった (Fig. 1)。この現象は、高温かつ還元的な条件下において SrTiO₃ の構造が不安定化し、TiO および Sr を含む副生成物へと分解が進行した結果であると考えられる [1]。すなわち、電子顕微鏡内の高真空環境 (約 5×10⁻⁶ Pa) 下で 1300 °C に加熱することにより、TiO が形成される過程を原子分解能で直接観察することに成功したことを示している。

今後、本手法を活用することで、高温環境下における材料の構造変化を原子スケールでその場観察することが可能となり、セラミックス材料における表面形成過程や焼結プロセスの理解に向けた有力なアプローチとなることが期待される。

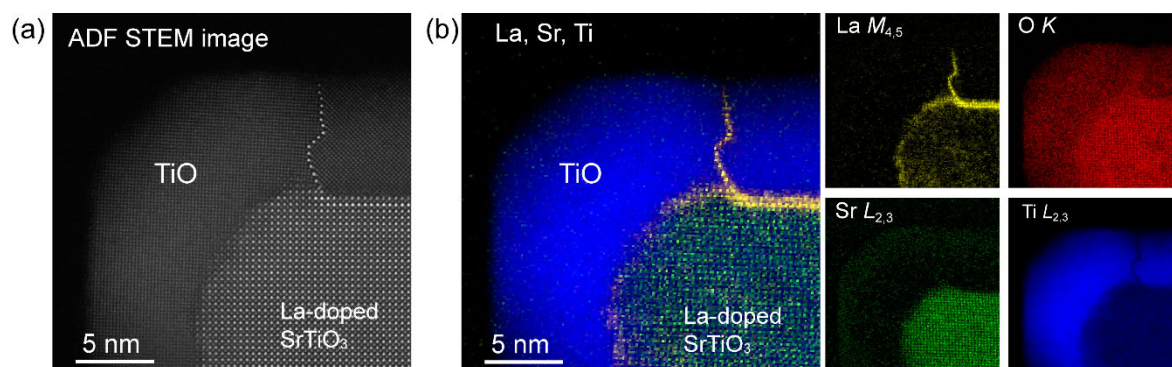


Fig. 1. (a) ADF STEM image and (b) EELS elemental maps of La-doped SrTiO₃ after heating at 1300 °C.

文献 [1] G. McCarthy, W. B. White, R. Roy, J. Am. Ceram. Soc. 1969, 52, 463.

謝辞 本研究は JSPS 科研費 (JP22H04914, JP23H00241) の助成、また、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。

低真空二次電子検出器を用いた絶縁体孔構造の SEM 観察

Observation of insulator hole structure using a secondary electron detector of low-vacuum SEM

筑波大学数理¹, °姚 遠昭¹, 渋谷 宗平¹, 関口 隆史¹

Tsukuba Univ.¹, °Yuanzhao Yao¹, Shuhei Shibuya¹, Takashi Sekiguchi¹

E-mail: yao.yuanzhao.gn@u.tsukuba.ac.jp

絶縁体試料を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察する際には、電子ビーム照射による帯電の影響を抑える必要がある。低真空下では、二次電子 (SE) による残留ガスイオン化により帯電が抑制されるが、SE が消費されるため像のコントラストが低下する。UVD (Ultra Variable-pressure Detector) は、SE の代わりにガスのイオン化に伴う発光を検出し、SE 像を得る技術である。本研究では、UVD 検出器を用い、絶縁体樹脂中の高アスペクト比深孔構造を低真空 SEM で観察した。図 1 には、真空度 30 Pa におけるアスペクト比 (AR) =12 の深孔構造と AR=3 の浅孔構造の UVD 像および BSE 像を示す。浅孔は両検出器で内部観察が可能だったが、深孔では UVD 像が微細な凹凸まで鮮明に捉えられたが、BSE 像では十分な情報が得られなかった。観察像の質は導電性や真空度に依存し、適切な条件設定により AR>10 孔の内部観察が可能であった。さらに、帯電モデルを構築し、観察条件によって孔の像が変化するメカニズムを検討した。

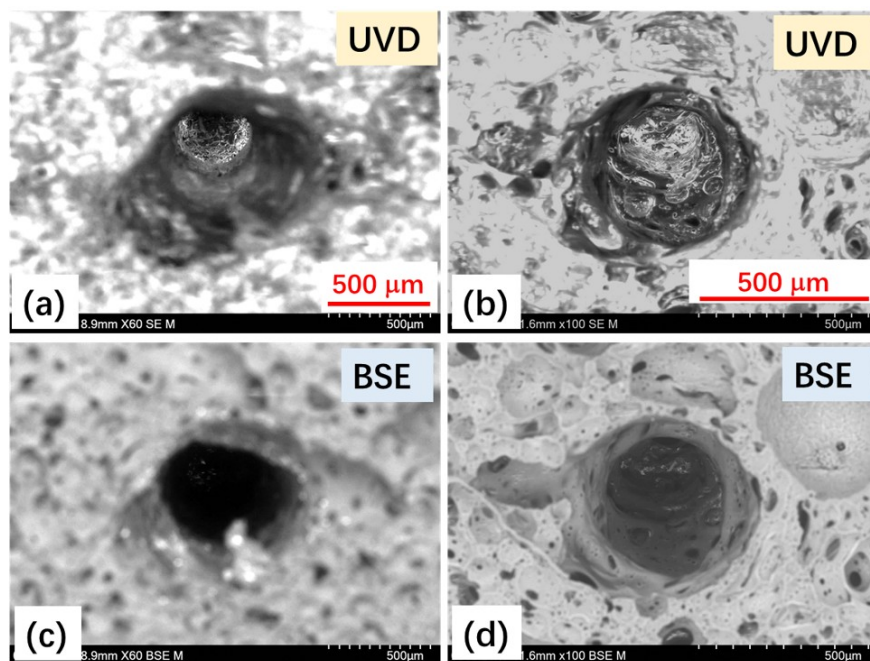


Fig. 1. SEM images of insulating holes with different aspect ratio (AR) taken by UVD detector and PD-BSE detector under a chamber pressure of 30 Pa. Acceleration voltage is 20kV. The electron beam is focused inside the holes. UVD images of (a) a deep hole, AR=12, and (b) a shallow hole, AR=3. (c) and (d) are the corresponding PD-BSE images to (a) and (b).

SEM の反射電子エネルギーフィルターの製作と像演算によるバンドパス像の構築

Fabrication of BSE Energy Filter and Construction of Bandpass BSE Image

筑波大学数理¹, 光産業創成大², 産総研³ ○関口 隆史¹, 姚 遠昭¹, 柳原 悠人², 熊谷和博^{1,3}University of Tsukuba¹, Graduate School for Creation of New Photonics Industries², AIST³○Takashi Sekiguchi¹, Yuanzhao Yao¹, Yuto Yanagihara², Kazuhiro Kumagai^{1,3}

E-mail: sekiguchi.takashi.fp@u.tsukuba.ac.jp

我々は、バイアスグリッドを付けた MCP(Microchannel Plate)を使って、ハイパス反射電子(BSE)検出を試みている。これまでバイアスグリッドで低エネルギーBSE を除外してハイパス像を得ていたが、グリッド電圧の制約から 1 kV が最大であった。そこで金属薄膜をフィルターとして使い、数 kV の閾値を実現させた。図 1 に 0.3 μm の Al 膜を通した電子の透過率を示す。

得られた画像に演算を施し、BSE のバンドパス像のエネルギー範囲を拡大することを試みている。バイアスグリッドでは BSE エネルギーが保存されるので、像の加算減算が可能である。図 2 はその例で、0.5 mm 径の SUS 球の(a) 二次電子(SE)像[0-50 eV], (b) 低エネルギーBSE 像[50 eV-1 keV], (c) 高エネルギーBSE 像[1-15 keV]である。低エネルギーBSE は他の像に比べ、明るさが均一で特徴を持たない。発表では、この像に含まれる情報について議論する。一方、薄膜フィルターでは全ての BSE がエネルギー減衰してしまうため、単純な像の引き算が意味を持たない。現在、簡便な演算法を模索中である。

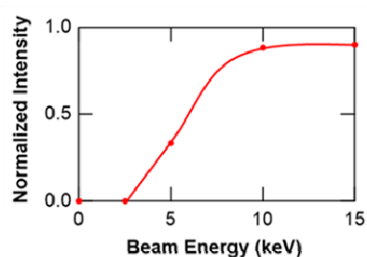


Fig.1. Transmittance of e-beam.
(Al film 0.3 μm thick)

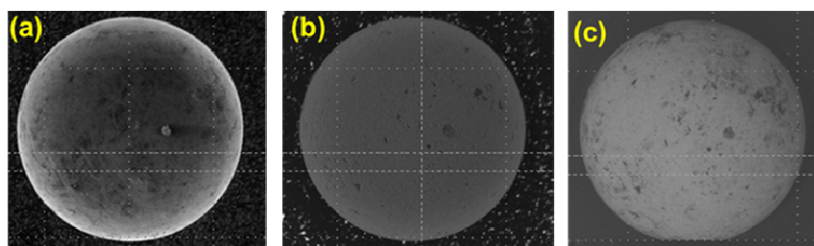


Fig.2. SUS sphere (0.5 mm ϕ) images taken at 15 kV. (a) SE, (b) low-E BSE, (c) high-E BSE

SEM 用全方位 SE/BSE 検出器の開発

Development of SE/BSE Detector arranged in a Dodecahedron

光産業創成大学院大学¹, 筑波大学数理², 産総研³

○柳原 悠人¹, 熊谷 和博^{2,3}, 姚 遠昭², 関口 隆史²

Graduate School for the Creation of New Photonics Industries¹, University of Tsukuba.², AIST³,

°Yuto Yanagihara¹, Kazuhiro Kumagai^{2,3}, Yuanzhao Yao², Takashi Sekiguchi²

E-mail: yuto-y@gpi.ac.jp

一般的な走査電子顕微鏡(SEM)では、異なるエネルギー感度特性を持つ検出器を異なる位置に配置し、二次電子(SE)及び反射電子(BSE)を分離検出している。我々はバイアスグリッドを装着した MCP を正十二面体フレームに配置することで、全方位・全エネルギーの信号電子を検出可能な SEM 用検出器の開発をしている。Fig.1 に(a)MCP を配置した正十二面体検出器の外観写真と(b)検出器模式図を示す。MCP の入射面に装着されたバイアスグリッドはハイパスフィルターとして機能し、信号演算によって SE および BSE を選択的に抽出することができる。さらに、Fig.2 に示すような針型ホルダーを使えば、上方、斜上、斜下に出射した SE/BSE の全てを捉えることができる。

現在は、上方および斜上方向に配置した 2 つの検出器を用いて、各方向から得られる SE/BSE 像の特徴を評価している。Fig.3 には、斜上方向に配置した検出器を用いて取得した Al-Bi 共晶の観察像を示す。講演では、斜上方向以外の検出器による観察結果や、他の材料試料に対する観察像についても併せて報告する。

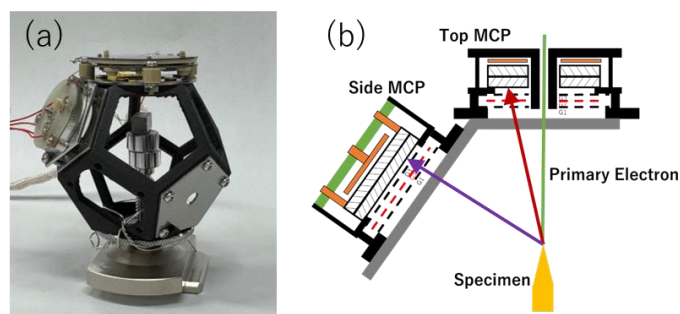


Fig.1. (a) Photograph of a Dodecahedron detector with MCPs and (b) schematic diagram of the detector

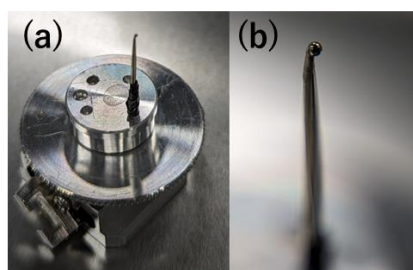


Fig.2. (a) Needle-type holder and (b) sample attached to the tip of the needle

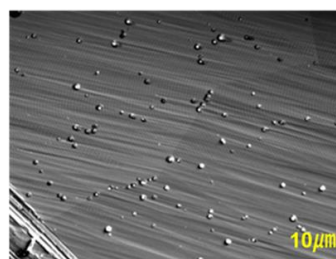


Fig.3. Side MCP image of Al-Bi metal

高繰返しレーザーによる超高速時間分解 SEM の高分解能化

Improving the spatial resolution of a scanning ultrafast electron microscopy using high repetition laser

筑波大数理¹, [○]三浦 研介¹, 岡本 ニコライ岳¹, 吉田 昭二¹, 藤田 淳一¹, 嵐田 雄介¹
Univ. of Tsukuba¹, [○]Kensuke Miura¹, Nikolai Gaku Okamoto¹, Shoji Yoshida¹, Jun-ichi Fujita¹, Yusuke Arashida¹

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

近年、情報通信を支える半導体デバイスの微細化による高速化が進む一方で性能評価が困難になりつつある。そこで本研究では高速電子デバイスの動作を直接的に理解することを目的として、走査型電子顕微鏡 (SEM) とフェムト秒レーザーを組み合わせた走査型超高速電子顕微鏡 (SUEM) の開発を行っている[1]。SUEM では光励起パルスと、レーザーを電子銃に照射して発生させた光電子パルスによるポンププローブ法を用いることでデバイス電極の高速電位変化を可視化して観測することが出来る。しかし、使用していたレーザー光源の繰返し周波数は 200 kHz であり 1 パルスに含まれる電子数が 3000 個と多かった。その結果、空間電荷効果によって電子パルス束が広がり空間分解能が約 880 nm に劣化する課題があった。そこで光源を高繰返しレーザーに置き換えることで平均電流量を保ちつつ 1 パルス当たりの電子数を減少させ、空間電荷効果を抑制した。

高繰返しレーザーには、波長 1030 nm, パルス幅 96 fs, 繰返し 76 MHz, パワー 900 mW のものを用いた。電子銃に照射するレーザーは波長変換したパワー 150 mW の 4 倍波 (257 nm) を用いており、以前と同じ平均電流量 10 pA を確保しつつ 1 パルス当たりの平均電子数は約 0.8 個へと減らすことができた。Figure 1a および 1b に低繰返しレーザーおよび高繰返しレーザーを用いた場合の段差構造の SEM 像をそれぞれ示す。高繰返し化によって鮮明な画像を得ることができた。断面形状の段差の立ち上がりを解析したところ、空間分解能は 880 nm から 92 nm と大幅に向上させることに成功した。このように SUEM の高分解能化には 10² MHz 程度の高繰返しレーザーが有用であることが分かった。

[1] Y. Arashida et al., ACS Photonics 11, 2171 (2024).

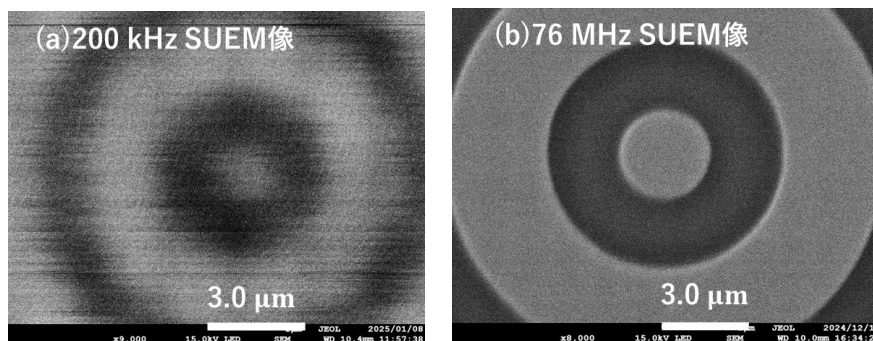


Fig. 1, SUEM images of a stepped structure using (a) low- and (b) high-repetition lasers.

超高速時間分解 SEM を用いた金属-半導体界面における空乏層形状

変化の可視化

Visualization of depletion layer dynamics at metal–semiconductor interfaces using scanning ultrafast electron microscopy

筑波大数理, [○]岡本 ニコライ岳, 三浦 研介, 鄭 サムエル, 吉田 昭二, 藤田 淳一,
嵐田 雄介

Univ. of Tsukuba, [○]Nikolai Gaku Okamoto, Kensuke Miura, Samuel Jeong, Shoji Yoshida,
Jun-ichi Fujita, Yusuke Arashida

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

半導体電子デバイスの微細化によってナノスケールかつピコ秒で動作するトランジスタ等が実現している一方で、表面状態や移動度等の不均一性を評価する手法が求められている。本研究では微細電子デバイス的高速動作を直接的に理解するためにピコ秒領域における電位の顕微イメージング技術を開発している。これまでに我々は光電子パルスを探プローブとするポンププローブ方式の時間分解 SEM を開発し光伝導アンテナにおける金属電極の電位の変化を 43 ps の時間分解能で可視化することに成功している[1]。今回、2 次電子量をロックイン検出することで測定感度を向上させ、金属と半導体の電位を同時に時間分解イメージングすることに成功した。

実験では、中心波長 1030 nm, パルス幅 190 fs, 繰返し 200 kHz の再生増幅レーザーを用い、この 4 倍波(4.8 eV)を SEM(JEOL 7200F)内のタングステン電子銃(4.5 eV)に照射することで光電子パルスを発生させプローブとして用いた。ポンプにはレーザーの 2 倍波(2.4 eV)を用い、DC で充電された光伝導アンテナに照射することで電極間の電位差を瞬間的にスイッチングした。ポンプ光に対して遅延時間変調法を用い[2]、2 次電子量をロックイン検出することで時間分解 SEM 画像を取得した。図にポンプ照射から 300 ps 後の光伝導アンテナ (Au 電極 on GaAs 基板) の SEM 像を示す。左の T 字部分がカソード電極であり、その周りの暗くなっている部分が GaAs 基板の空乏層形状を表している。今回、遅延時間を 5 ns まで変化させることで光励起後の空乏層幅が 0.6 $\mu\text{m}/\text{ns}$ で拡大している様子を観測した。この結果は金属電極と半導体の電位の同時可視化に成功したことを意味しており、今後、先端的な半導体デバイス動作の直接解明技術への適用が期待される。

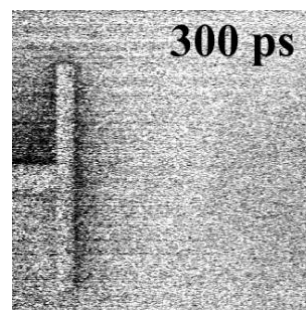


Fig. Time-resolved SEM image
of the photoconductive antenna

[1] Y. Arashida *et al.*, *ACS Photon.*, 11, 2171 (2024).

[2] H. Mogi *et al.*, *npj 2D Mater. Appl.* 6, 72 (2022)

走査電子顕微鏡の電子ビーム形状推定

Electron Beam Shape Estimation in Scanning Electron Microscope

筑波大学数理物質科学研究群 田中 満, [○]早田 康成

University of Tsukuba, Michiru Tanaka and [○]Yasunari Sohda

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

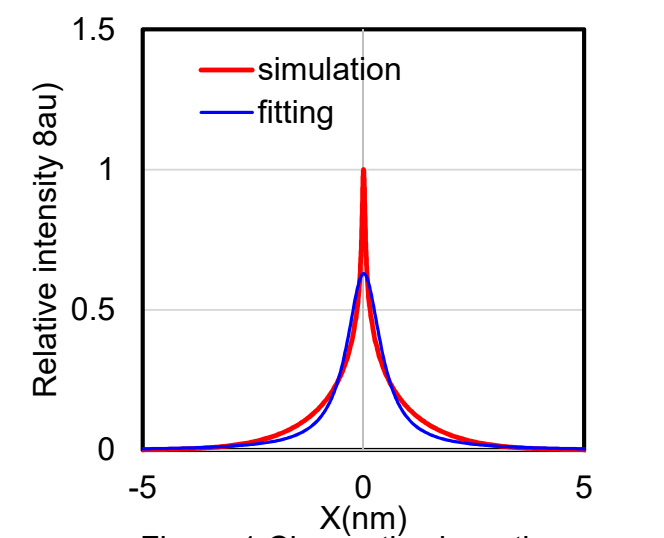
研究背景

これまで、走査電子顕微鏡（SEM）の基本的な特性の1つである試料上での電子ビームサイズを像シャープネス（DR 値）から推定する方法の研究を進めてきた。^{[1][2]}しかし、DR 値はビーム形状を単なるガウス分布と仮定して求めているため、本研究では電子ビームの形状情報を得ることを目的として、ビーム形状をガウス関数とローレンツ関数をコンボリューションした関数（フォークト関数）と仮定してビーム形状の推定を行った。

実験方法

SEM のビーム形状は様々な要因により決定される。その中で重要な要因として色収差と球面収差が挙げられる。Figure 1 は焦点面での色収差によるビーム形状とフォークト関数によりフィッティングした結果である。フィッティング結果は 100%のローレンツ関数となり、フォークト関数を導入する有効性が分かる。

撮像実験には Si の異方性ウェットエッチングで作製した Si のライン&スペースパターンを用いた。電子ビームのエネルギーは 10keV である。得られた SEM 画像から平均化エッジプロファイルを求めて、電子散乱シミュレーションによるエッジ効果補正^[3]を行った。



実験結果

Figure 2 に実験により得られたパターンエッジの 2 次電子信号プロファイル（赤）とフィッティング曲線（青）を示す。ガウス関数よりフォークト関数がより良く一致している。フォークト関数の幅の比率はガウス関数 2 に対してローレンツ関数 1 である。更に、スルーフォーカスにより 2 つの関数の幅が変化することが明らかとなり、その傾向は装置の光学収差に起因する可能性があることが分かった。

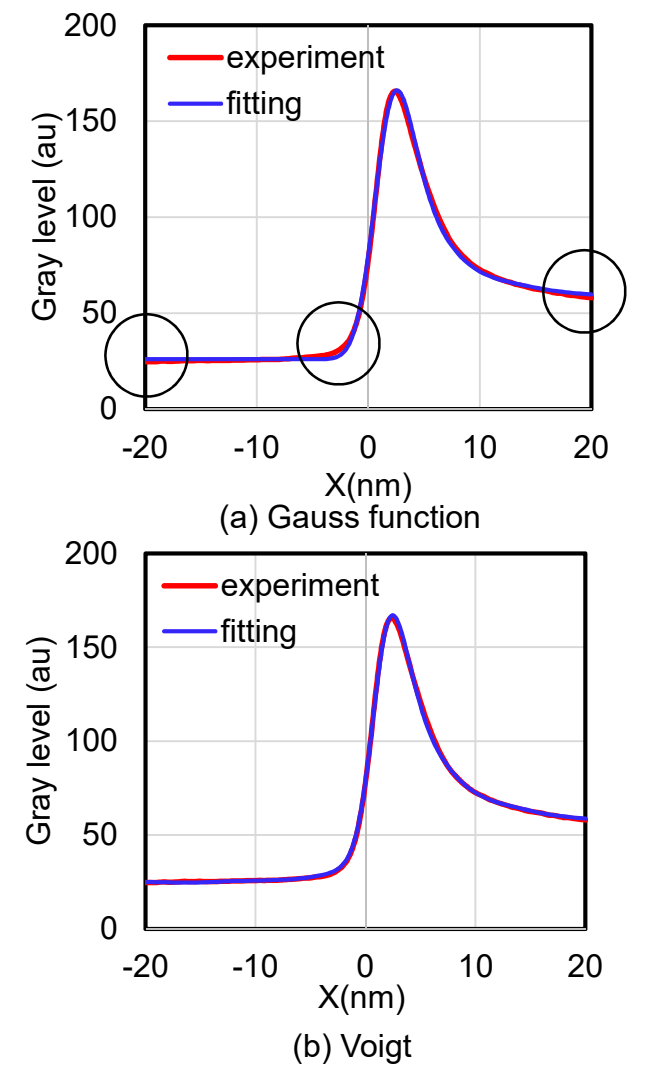


Figure 2 Edge profile fitting

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

[2] 戸倉大智, 2024 応用物理学会秋季学術講演会

[3] 戸倉大智, 2025 応用物理学会春季学術講演会

空間電荷効果を考慮した一般 3 次元境界電荷法の改良

Development of an Improved 3D Boundary Charge Method Considering Space Charge Effects

名城大理工 ○鈴木 悠斗, 村田英一, 田中 崇之, 六田 英治

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

E-mail: 243427019@ccmailg.meijo-u.ac.jp

1. はじめに

本研究では、空間電荷効果を考慮した一般 3 次元境界電荷法を提案する。この手法では、陰極近傍に仮想陽極を挿入し、陰極から仮想陽極までは解析的に空間の電位、電界、電流密度を計算し、仮想陽極から陽極までは実際の電子軌道計算を行うという考えに基づいている[1]。今回はその第 1 段階として、平行平板電極間での空間電荷効果を考慮に入れた境界電荷法の原理的な部分の開発を行ったので報告する。

2. シミュレーション方法

空間電荷を、陰極面近傍に滞留する「陰極面電荷」と電子軌道に沿って自由空間に配置される「空間電荷」の 2 種類に分ける。平行平板電極において陰極を $z=0$ 、陽極を $z=z_a$ としたとき、図 1 に陰極面電荷の量に応じた z 軸上の電位分布を示す。

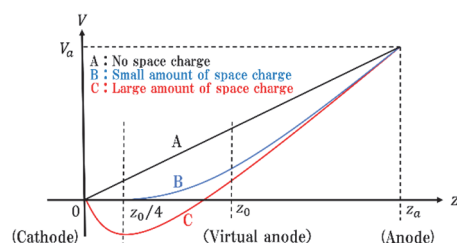


Fig. 1. Z-axial potential distributions according to the amount of cathode surface charge.

図 1 中の A は、空間電荷が存在しないときの電位分布を示すが、陰極面付近の空間電荷が増加すると、図 1 中の B や C のように電位分布は下方に歪む。B や C の電位を再現するため、図 2 で示されるように陰極前面の適当な位置 $z = z_0$ に仮想陽極、 $z = z_0/4$ の位置に代用電荷を挿入する。代用電荷の電荷密度 σ 、仮想陽極の電位 V_0 の値は、設定する陰極電流密度 J より解析的に決定される。陰極から放出される電子は、仮想陽極まで直進するものと考え、実際の軌道計算では、仮想陽極までの電子の速度 v_0 を考慮した上で、仮想陽極から電子軌道計算を開始する。その電子の軌道は、仮想陽極での

電子の位置および速度を初期条件として、前回の電子軌道計算で得られた軌道上に配置された空間電荷 $Q (= -I \cdot \Delta t)$ による電界 $\mathbf{E}_Q$ および電極面からの電界 $\mathbf{E}_s$ (境界電荷法により計算される) の総和の電界 $\mathbf{E} (= \Sigma \mathbf{E}_Q + \Sigma \mathbf{E}_s)$ 、電子の素電荷および質量から構成される電子の運動方程式を、ルンゲクッタギル法により数値的に解くこと (Δt 秒ごとの反復計算) により得られる。

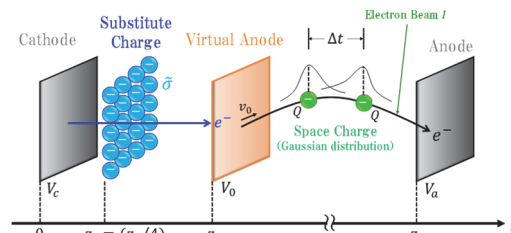


Fig. 2. Conceptual diagram of substitute charge and virtual anode.

3. 結果およびまとめ

図 3 は、 $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ の平行平板電極を用いて陰極－陽極間距離を 200 mm 、陰極－仮想陽極間 1 mm とし、陽極電圧を 100 kV とした場合のシミュレーション結果である。陰極の仕事関数はタングステンを想定し、 4.54 eV に設定した。図 3 (a)では、陰極温度が低く空間電荷の影響を無視できるため、電子は陽極まで直進している。一方、図 3 (b)では、陰極温度が高く陰極面電荷が形成され、電子ビームが発散することが確認できた。

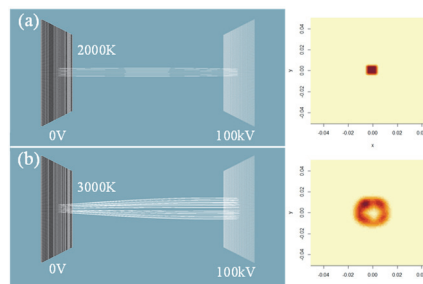


Fig. 3. Typical examples of electron trajectory at $T = 2000 \text{ K}$ (a) and 3000 K (b).

[1] 藤田 真, 大田 昌弘: 島津評論, Vol. 57, No. 1・2, pp. 67-77, (2000).

電子源からの放出電子のランダムサンプリング

Random Sampling of Emitted Electrons from an Electron Source

筑波大数理¹, 名城大理工² [○]岸田一甫¹, 早田康成¹, 村田英一²

Univ. of Tsukuba¹, Meijo Univ.² [○]Ippo Kishida¹, Yasunari Sohda¹ and Hidekazu Murata²

E-mail: s2420282@u.tsukuba.ac.jp

研究背景

走査電子顕微鏡の分解能向上には、電子源の仮想光源径を小さくすることが重要である。しかし、電子源や電子銃電極の機械的な作製誤差が光学収差の原因となり、仮想光源径を増大させる。この収差を解析するための手法として、境界電荷法を用いた三次元電子軌道シミュレーションが有力である。^[1]

電子源における電子軌道計算を行うためには、電子源からの放出電子の初期条件を決める必要がある。今回、電子源の表面電場から決まる放出位置、エネルギー、放出角度の分布についてランダムサンプリングを行う手法を開発した。

計算方法と結果

境界電荷法のソフトウェアには、名城大学の村田先生より提供して頂いた BCM を用いた。初期条件決定に用いる表面電場は、作成した球面電子源のモデルに対して、BCM の電位電場計算機能により算出した。機能の開発やサンプリングは Python を用いて行った。

電子の放出位置は放出電流密度分布から決定される。放出電流密度は与えられた表面電場から、Fowler-Nordheim 式^[2]によって算出される。また電子のエネルギー分布は、供給関数と透過関数の積で表される。この供給関数と透過関数も表面電場から決定される。エネルギー分布は全エネルギーと垂直方向エネルギーの2次元分布であり、どちらかを積分することでもう片方の分布が得られる。電子の速さは全エネルギーから計算され、放出角度は両エネルギーの比の逆三角関数から得られる。Table1 に各項目と分布およびサンプリング手法の関係を示す。

得られた結果として Figure1 に放出位置、Figure2 にエネルギー、Figure3 に放出角度の分布を示す。赤の理論曲線と青のサンプリング結果が良く一致していることが分かる。

[1] H. Murata, Proc. SPIE 3155 (1997)

[2] RUSSELL D. YOUNG, Physical Review 113.1 1959.1.1

Table1. Distribution and sampling methods

	元となる分布	サンプリング手法
放出位置	電場分布	棄却法
エネルギー	全エネルギー分布	逆関数法
放出角度	垂直エネルギー分布	棄却法

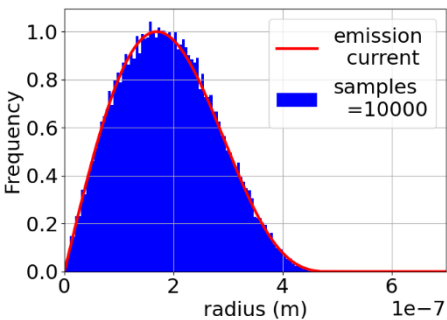


Figure1. Sampling results of emission position distribution

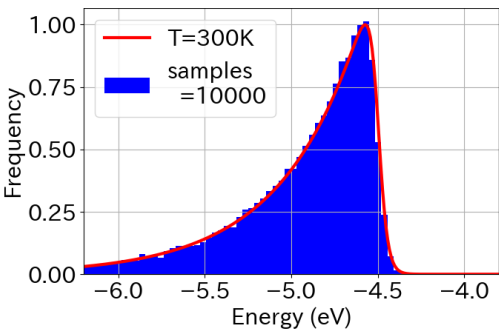


Figure2. Sampling results of electron energy distribution

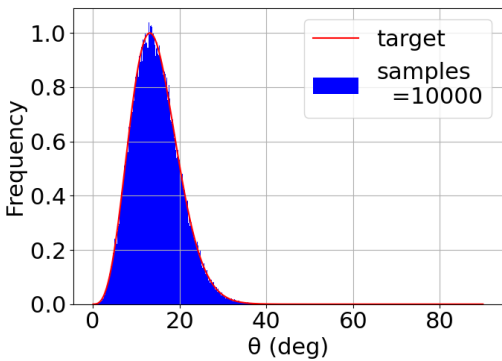


Figure3. Sampling results of emission angle distribution

ファセット電子源のクーロン効果シミュレーション

Simulation of Coulomb Effect in Facet Electron Sources

筑波大学数理物質科学研究群 °里見昂哉 早田康成

University of Tsukuba, °Takaya Satomi and Yasunari Sohda

E-mail: s2420294@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。ここでは電子源として広く利用されているファセット型電子源と、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^[1]を対象として、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比較した。

計算方法と結果

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。以下が主な計算条件である。

WF:4.5[eV], 温度:300[K], 曲率半径:0.3[μ m]

Fig.1 に評価結果を示す。ファセット電子源・球面電子源 2 つ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。ファセット電子源の方が飽和する換算輝度は小さかった。Fig.2 には形状によって電流密度分布が大きく異なることを示す。

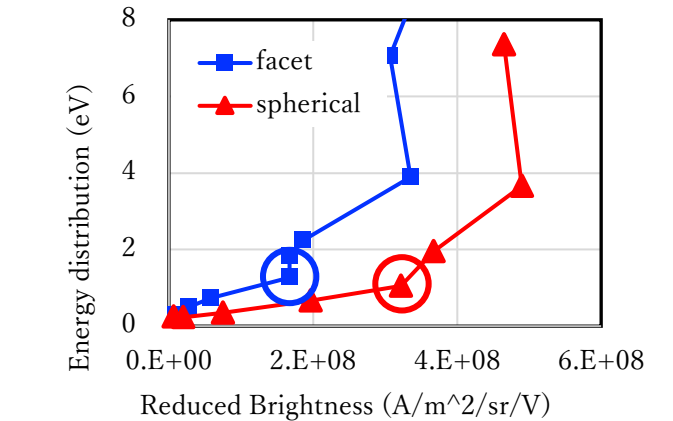


Fig.1 Dependence of electron source characteristics on shape

Fig.2 は Fig.1 の○印の条件で作成した。ファセット電子源は電子源先端の端より電界集中のために大電流が流れる。これが電子源形状の違いの効果の 1 つである。^[3]

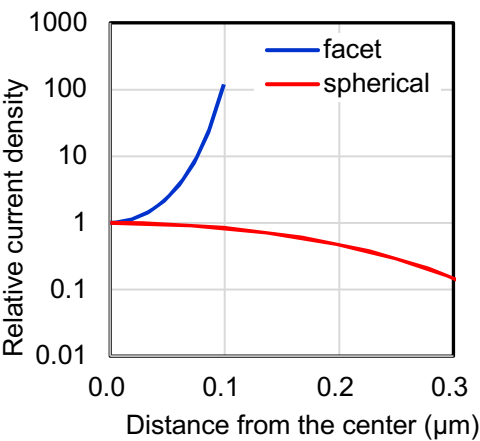


Fig.2 Electron source characteristics of each shape

Fig.3 に電流の放出領域を制限した際の評価結果を示す。ファセット電子源では、端からの電流放出を抑制することで特性が良くなることがわかった。

以上のことより、球面電子源とファセット電子源での特性の違いの原因として、ファセット端から放出される電子により生じるクーロン効果が考えられることが分かった。

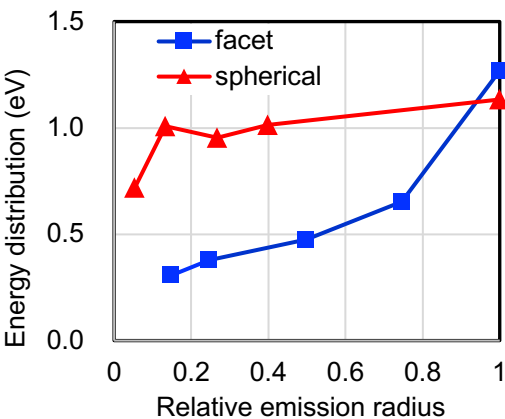


Fig.3 Dependence of energy distribution on the emission region

[1] 姫田幸毅, 2024 応用物理学会秋季学術講演会
[2] J. Rouse, NIM A645 (2011) 310–315
[3] D. W. Taggle, JVST B Vol.3, No.1 (1995) 220-223

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

[9p-N403-1~16] 7.2 電子ビーム応用

[9p-N403-1]

転写モールド法微小突起型陰極アレイによる誘電体バリア放電特性評価

○(M2)磯谷 隆斗¹、文 宗鉉¹、根尾 陽一郎¹ (1.静岡大電研)

[9p-N403-2]

TiNコート層の成膜条件がフィールドエミッタアレイの電子放出特性に与える影響

○村田 博雅¹、大住 知暉^{1,2}、後藤 康仁²、村上 勝久¹、長尾 昌善¹ (1.産総研、2.京大院工)

[9p-N403-3]

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再加熱後の動作tip数の改善

○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)

[9p-N403-4]

電界誘起酸素エッチングによるNb tipの先鋭化

○堀川 愁斗¹、志摩 惇紀¹、岩田 達夫¹、永井 滋一¹ (1.三重大院工)

[9p-N403-5]

ショットキーモードでのLaB₆エミッタの電子放出測定

○伊藤 昂陽¹、村田 英一¹、田中 崇之¹、六田 英治¹ (1.名城大理工)

[9p-N403-6]

液体金属を用いた電界放射電子源のエネルギー分析

○(M2)佐藤 宏樹^{1,2}、根尾 陽一郎^{1,2}、文 宗鉉^{1,2} (1.静岡大院工、2.静岡大電研)

[9p-N403-7]

高温超伝導体からの電界電子放出特性に関する考察

三宅 広士¹、田邊 詩祐¹、阿保 智¹、○若家 富士男¹、岩渕 修一²、長尾 昌善³、村上 勝久³ (1.阪大基礎工、2.奈良女子大、3.産総研)

[9p-N403-8]

Graphene/h-BN/Ni積層構造平面型電子放出デバイスの開発

○村上 勝久¹、六川 蓮^{1,2}、鷹尾 祥典²、村田 博雅¹、長尾 昌善¹ (1.産総研、2.横国大)

[9p-N403-9]

電界放出電子源の光源径測定の精度低下要因の検証

○川本 絵里奈¹、松永 宗一郎^{1,2} (1.日立製作所、2.日立ハイテク)

[9p-N403-10]

熱酸化CeB₆からの電界放出の安定性評価

○鶴田 諒平¹、荒井 元哉¹、大場 宏祐¹、山田 洋一¹ (1.筑波大数理)

[9p-N403-11]

有機分子による仕事関数制御を通じたフォトカソードの寿命延伸と量子効率改善

○館農 真斗¹、森山 美優¹、大原 正裕⁴、森井 克行^{2,5,6}、石井 久夫^{1,2,3}、深川 弘彦^{1,2,3} (1.千葉大融合理工、2.千葉大先進、3.千葉大MCRC、4.信州大工、5.大阪大、6.日本触媒)

[9p-N403-12]

フォトカソード形状の違いによる極短パルス電子線の伝播・特性の変化

○(M1)長尾 梨代¹、Privault Gaël¹、嵐田 雄介¹、岩崎 ゆい¹、野山 豪大¹、藤田 淳一¹、Arbouet Arnaud^{1,2}、羽田 真毅¹ (1.筑波大数理、2.CNRS IRL Dynacom)

[9p-N403-13]

金属メタ構造を利用するフォトカソードの開発

○福本 恵紀¹、ピアテンコ エリザベス¹、豊澤 剛²、久保 敦² (1.高エネ研、2.筑波大物理)

[9p-N403-14]

NEA-InGaNフォトカソードにおける電子ビーム動作時間の現状

○小泉 淳¹、佐藤 大樹^{1,2}、西谷 智博^{1,2}、本田 善央²、天野 浩² (1.Photo electron Soul、2.名大未来研)

[9p-N403-15]

NEA-InGaNフォトカソード電子銃を用いた帯電抑制SEM撮像

○安田 光伸¹、西谷 智博^{2,3}、小泉 淳²、荒川 裕太²、新美 浩太郎²、佐藤 大樹^{2,3}、石川 純久¹、大塚 祐二¹ (1.東レリサーチセンター、2.Photo electron soul、3.名古屋大学)

[9p-N403-16]

c面サファイア基板上 AlGaAs分子線エピタキシャル成長層の
結晶構造評価

○和島 颯汰^{1,2}、橋本 英李^{1,2}、佐藤 大樹³、小泉 淳³、西谷 智博³、石川 史太郎² (1.北大情科院、2.北大量集セ、3.フォトエレクトロンソウル)

転写モールド法微小突起型陰極アレイによる誘電体バリア放電特性評価 Dielectric Barrier Discharge Characteristics Using Micro-Protrusion Cathode Arrays by Using Transfer Mold Emitter Fabrication Methods

静岡大電研 ○(M2) 磯谷 隆斗, 文 宗鉉, 根尾 陽一郎

Shizuoka Univ., Res. Inst. Electronics, ○Ryuto Isotani, Jonghyun Moon, Yoichiro Neo

E-mail: isotani.ryuto.20@shizuoka.ac.jp

【はじめに】紫外線光源として応用されている誘電体バリア放電デバイスなどには、平行平板型や同軸円筒型が用いられますが、いずれも電極の放電面は平面型であり、局所的な異常放電が発生しやすいという課題があります。先行研究では、陰極の表面形状を微小突起型に成形することで、高効率な紫外線源の実現を目指しました[1]。その有効性を検証するため、本研究で提案する微小突起型陰極を有するデバイスと、比較対象である従来の平面型陰極を有するデバイスを試作し、両デバイスの放電電荷量を比較して、さらに等価回路モデルを用いてその電氣的挙動を評価した結果を報告する。

【実験方法と結果】転写モールド法を用いて微小突起型陰極アレイを作製した[1]。アルゴンガス圧力 2 kPa、2 kHz の交流電圧印加条件下における微小突起型陰極アレイの誘電体バリア放電を評価した。この結果を Fig.1 に示す。従来の平面型デバイスの放電電流と比較することで、微小突起構造の有効性を検証した。さらに、電流積分電荷法を用いて微小突起型陰極アレイの誘電体バリア放電電荷量の評価を行った。平面型の放電電荷量 0.087 μC に対し、微小突起型陰極アレイデバイスでは 0.2 μC となり、約 2.3 倍に増加した。これは、突起先端における局所的な電界強度の上昇が、より高強度のマイクロ放電の発生を促進し、結果として放電電荷密度が増大するためと考えられる。突起構造に起因するマイクロ放電による静電容量を平面部におけるグロー放電の静電容量と並列に接続した新たなモデルを提案し、評価した結果を報告する予定である。

【結論】転写モールド法を用いて作製した微小突起型陰極アレイでは、突起先端における局所的な電界強度を上昇させ、より高強度のマイクロ放電の発生を促進し、放電電荷密度が増大させると考え

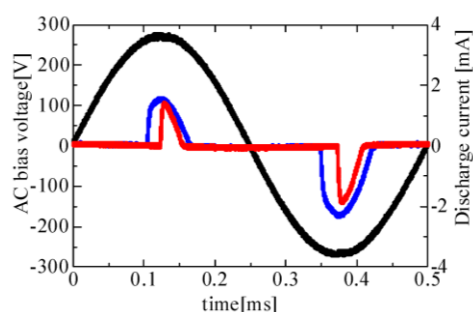


Fig. 1. Time-dependent discharge characteristics of Transfer Mold micro-protrusion cathode arrays (blue line, ---), compared with those of a flat-type cathode (red line, ---). The AC bias with 2 kHz, is shown as a black line (---).

られる。突起型誘電体バリア放電デバイスの紫外線発光強度は従来の平面型デバイスと比べて約 1.9 倍増加した[1]。誘電体バリア放電の電気等価回路モデルに突起先端付近に生じるマイクロ放電に対応するキャパシタンス成分のパラメータを用いて、微小突起アレイによる放電電荷量の増加することが説明できた。講演では、電氣的挙動の評価について議論する。

[1] 文宗鉉他, 2021 年第 82 回応用物理学会秋季学術講演会 講演予稿集, 10p-N401-5 (2021)

TiN コート層の成膜条件がフィールドエミッタアレイの電子放出特性に与える影響

Effect of TiN deposition conditions on the emission characteristics of TiN-coated field emitter arrays

産総研¹, 京大院工² °村田 博雅¹, 大住 知暉^{1,2}, 後藤 康仁², 村上 勝久¹, 長尾 昌善¹

AIST¹, Kyoto Univ.², °Hiromasa Murata¹, Tomoaki Osumi^{1,2}, Yasuhito Gotoh², Katsuhisa Murakami¹, Masayoshi Nagao¹

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

【はじめに】 エックス線源や進行波管などの用途に向けては、フィールドエミッタアレイ(FEA)の大電流動作が求められる。我々はこれまでの研究で、TiとN₂ガスの反応性スパッタリングによりSi-FEAにTiNコーティングを施すことで約1000 tipのFEAから約8 mAという大電流動作を実証した[1]。一方で、TiNのスパッタリング成膜条件と電子放出特性の関係は明らかになっていない。本研究では、Ar/N₂ガス比を変えてTiNコート層を成膜し、電子放出特性の評価および仕事関数の解析を行った。

【実験方法】 Siウエハ上にドット状のSiO₂を形成し、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/N₂ガス(Ar/N₂ = 20/1-5, 0/20 sccm)を用いた反応性スパッタリングによりTiN膜をSiコーン上に被覆した。絶縁層(SiO₂)およびゲート電極層(Nb)を成膜した後、レジストのエッチバック法によりゲート電極を開孔し、BHFによりSiO₂を除去してTiNエミッタ先端を開孔した。

【実験結果】 作製したTiN-FEAについて、エミッタをGND、アノードを1000 Vに固定し、ゲート電極に電圧を印加してI-V測定を行ったところ、Ar/N₂比によって動作電圧が大幅に変化した。そこで、先端曲率半径15 nm、電子放出角30°、動作チップ数1000 tipsと仮定した上で、仕事関数を変数としてFowler-Nordheim(FN)の式を計算し(直線)、実験データ(プロット)と比較することで、各成膜条件における仕事関数を推定した(Fig. 1)。その結果、Ar/N₂ = 0/20, 20/5, 20/3 sccmで作製したFEAの仕事関数は、それぞれ3.05, 4.30, 4.60 eVと見積もられた。XPSの評価結果からN₂ガス流量が少ないほどTiN膜中の酸素濃度が上昇する傾向が示されており、今回推定された仕事関数の差はこのTiN膜中の酸素含有量の違いを反映している可能性がある。

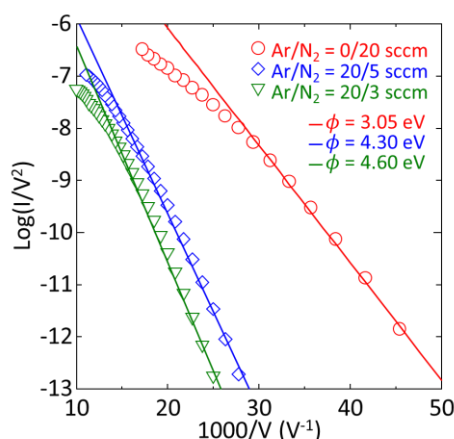


Fig. 1. FN plots of TiN-FEA.

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

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 の再加熱後の動作 tip 数の改善

Improvement in the number of active tips after reheating in TiN coated volcano-structured field emitter array

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

前回の応用物理学会では、反応性スパッタにより 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）[1]を用いてエージング（long time DC drive）処理および加熱処理前後での各 tip のエミッション電流値の変化について報告した[2]。FEA を動作すると徐々に全体エミッション電流が減少するが再加熱により初期動作に近い水準まで回復することが分かっている。今回は、再加熱後の動作 tip 数の改善について観察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 をマルチエミッタ評価装置[3]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、同準備室で加熱（ 250°C 24 時間）、エージング 3 時間、エージング 24 時間行う。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。図 1 は加熱処理後のゲート電圧 $V_g = 50$ V 動作の FEEM 像である。ここでは MCP の増幅電圧を最大 Gain よりも低い電圧に固定しているため、実際には図 1 で確認できる動作 tip 数よりも多く動作している（同じ Gain に固定することで動作 tip 数の比較が可能）。この条件下において、加熱処理により動作 tip 数が 15 から 91（図 1 (a)から(b)）に増加した。そしてエージング 24 時間（図 1 (c)）行うと動作 tip 数は減少したが、再加熱（ 250°C 24 時間）（図 1 (d)）により動作 tip 数という観点でも 1 回目の加熱処理後の水準にまで回復した。図 2 はゲート電圧 V_g の変化に対する動作 tip 数の推移を示す。処理の手順は図の数字の順に行った。加熱処理後（図 2 ②）は初期動作（図 2 ①）から大幅に増加した。エージング 24 時間後（図 2 ④）は動作 tip 数が減少したが、再加熱によって（図 2 ④から⑤）数 V ほど低電圧側に移動していることが分かる。

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

[2] Y. Kawasaki, H. Murata, H. Murata, M. Nagao, The 72nd JSAP 15p-K507-5.

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

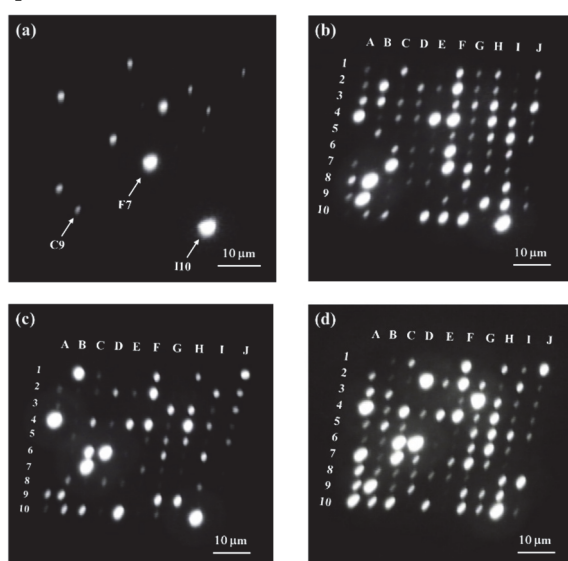


Fig. 1. FEEM images at $V_g = 50$ V, initial (a) after thermal treatment(b), after 24h aging(c), and after 2nd thermal treatment(d)

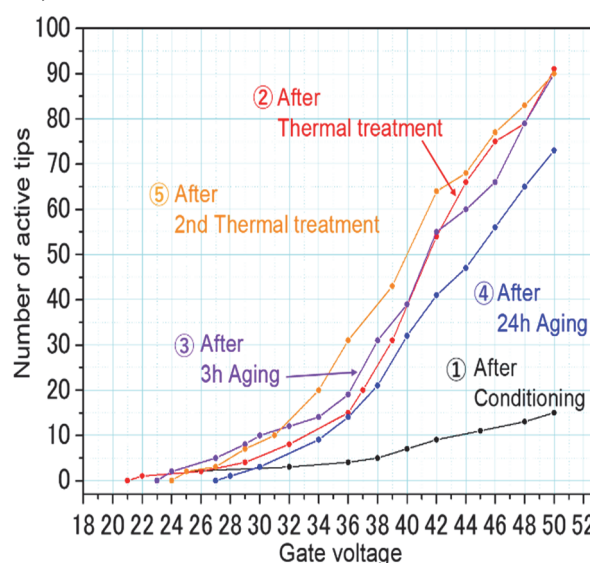


Fig. 2. Transition in the number of active tips after each treatment

電界誘起酸素エッチングによる Nb tip の先鋭化

Sharpening of Nb tips by the Field-assisted Oxygen Etching

三重大院工 [○]堀川愁斗, 志摩惇紀, 岩田達夫, 永井滋一

Grad. Sch. of Eng., Mie Univ. [○]Shuto Horikawa, Junki Shima, Tatsuo Iwata, Shigekazu Nagai

E-mail: 425m238@m.mie-u.ac.jp

顕微分析装置の空間分解能向上の観点から、電子源の輝度および電界放出電子のエネルギー幅は重要な性能である。電子源の高輝度化の手法の一つとして、エミッタ先端の先鋭化およびナノ突起構造体の形成する電界誘起酸素エッチングが挙げられる。本研究では、高輝度特性に加えてエネルギー幅狭小化を目的に、超伝導体 Nb tip に W^[1], Ir^[2]と同様に電界誘起酸素エッチングによる先鋭化が可能か検証した。

市販の Nb ワイヤ(0.127 mm Φ)の結晶粒を粗大化させるため、1300 K で 3 時間通電加熱し、先端を 5 mol/L の KOH 水溶液で交流電圧で電解研磨した。電解研磨で先鋭化した Nb tip を電界イオン顕微鏡(FIM)に導入し、液体窒素で 110 K に冷却して、電界蒸発によって表面を清浄化した。FIM の結像ガスとして、Nb の蒸発電界(40V/nm)よりもイオン化電界が低い Ne(37V/nm)を 1.0×10^{-3} Pa を用いた。その後、O₂(1.0×10^{-5} Pa)を導入し、Nb tip 先端の電界強度を一定に保つために最良像電圧(BIV)から段階的に電圧を下げ、電界誘起酸素エッチングを行った。

Fig. 1 は表面清浄後、BIV 8.2 kV で観察した Ne-FIM 像である。リングカウント法により、曲率半径は約 6.4 nm と推定される。また、スクリーン全体に FIM 像が投影されていないことから、突起形状であることが判る。酸素エッチングを 250 秒施した後、BIV 7.4 kV で観察した Ne-FIM 像を Fig. 2 を示す。酸素エッチング後の曲率半径約 3.8 nm であり、エッチング前よりも個々の輝点が大きくなっていることから曲率半径が縮小していることが判る。これらの結果より、本報告での酸素圧条件下で Nb に対しても制御可能な速度で電界誘起酸素エッチングによって先鋭化可能であることが示された。

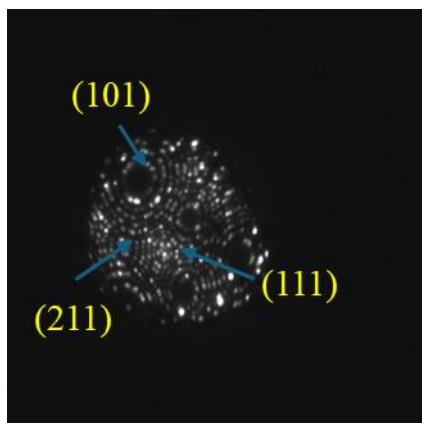


Fig. 1. Ne-FIM image of a clean Nb tip observed at 8.2 kV(BIV) before the oxygen etching

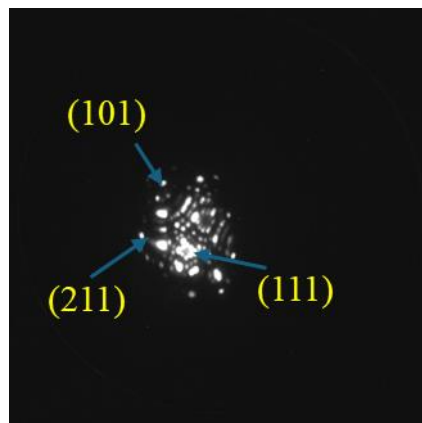


Fig. 2. Ne-FIM image observed at 7.4 kV(BIV) after the oxygen etching

[1] F. Rahman, *et al*, Surf. Sci. **602**, 2128 (2008).

[2] J. A. Wood, *et al*, Surf. Sci. **367**, 277 (2016).

ショットキーモードでの LaB_6 エミッタの電子放出測定 Electron emission measurement of a LaB_6 cathode in Schottky mode

名城大理工 ○伊藤 昂陽, 村田 英一, 田中 崇之, 六田 英治

Meijo Univ., ○ T. Ito, H. Murata, T. Tanaka, E. Rokuta

E-mail: 253427001@meijo-u.ac.jp

1. はじめに

次世代の電子線リソグラフィ装置の性能向上には、高性能電子源が必要不可欠である。これの実現には、高輝度・大電流・高安定性・長寿命の条件を満たす電子銃を開発することが必要である。長寿命化には動作温度の低下が必要だが輝度は低下する。これまで我々は、低い加熱温度での熱電子放出の評価を行ってきた[1]。今回は、低下した輝度を補償するために、ショットキーモードで LaB_6 エミッタの評価を行ったので報告する。

2. 実験方法

Fig. 1 は実験系の模式図を示す。実験装置内の真空度は約 $10^{-7} \sim 10^{-6}$ [Pa] である。エミッタには LaB_6 を使用する。負の高圧に浮かせた電流源を用いて、エミッタを通電加熱し、電子放出させる。スクリーン電流 I_s と、スクリーン後方に設置したファラデーカップを用いてスクリーン中央部のビーム電流 I_F を測定できる。エミッタ温度を一定にした条件の下で、エミッタの印加電圧を変化させてファラデーカップ電流 I_F を測定する。

3. 実験結果およびまとめ

エミッタ温度を 1535 [K] に固定し、印加電圧を 0.05~2.0 [kV] の間で変化させて I_F を測定した。Fig. 2 は I_F の電圧-電流特性を示す。印加電圧が 500 [V] を超えたあたりから本来増加する電流値が減少していく。この原因はエミッタ先端の曲率半径が大きいので、電子がスクリーン方向ではなく引出電極に直接流れ込むためである。またエミッタ側面からの放出電子も引出電極に直接流れ込んでいる。次に、引出電極を取り外し二電極系に変えて、エミッタ温度を 1558 [K], 1395 [K] の二つの条件の下で、印加電圧を 0.4~5.0 [kV] の間で変化させて I_F を測定した。Fig. 3 は測定した I_F より作成したショットキープロットを示す。漸近直線の切片から仕事関数は、エミッタ温度が 1558 [K] のとき 2.62 [eV]、エミッタ温度が 1395 [K] のとき 2.53 [eV] と算出できた。 LaB_6 の仕事関数の理論値とほぼ一致している。引出電極を取り外すと、高電界側での漸近線が直線的になっていることからショットキー効果が正常に働いていることが分かる。しかし、これ以上の高電界を印加するためには引出電極を取り付けなければならない。引出電極を取り付けた状態での、ショットキー電子放出の改善策として、エミッタ先端

を除いて密着性が良く仕事関数の高い材料で LaB_6 エミッタをコーティングすることと、エミッタ先端の曲率半径を小さくすることが考えられる。

[1] 梶田 他：第 83 回応用物理学会秋季学術講演会 21a-C306-7(2022)

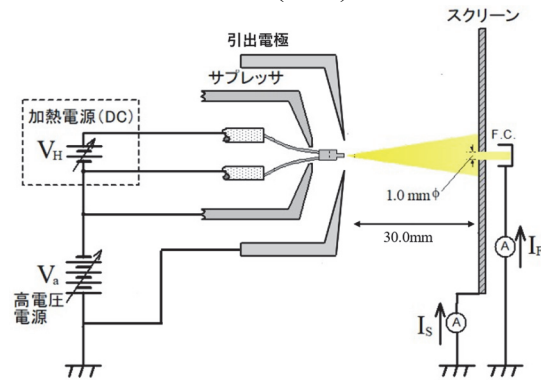


Fig. 1. Schematic diagram of experimental system

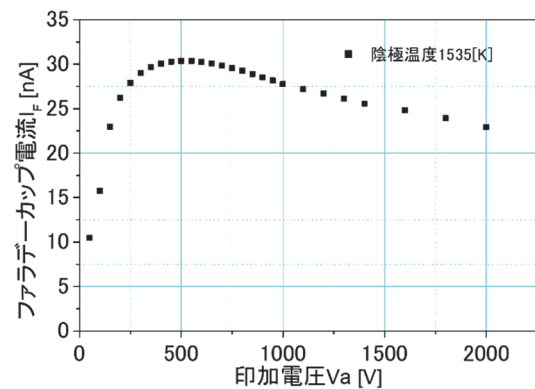


Fig. 2. Voltage-current characteristics of LaB_6 emitter with extraction electrode

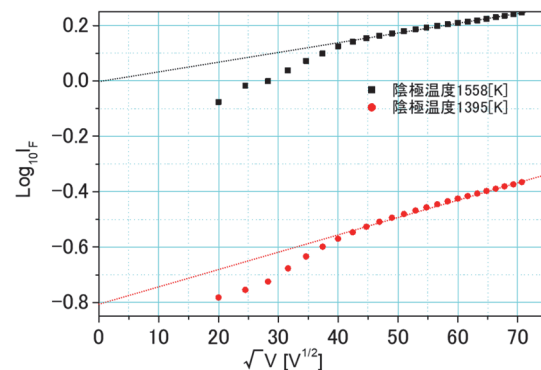


Fig. 3. Typical examples of Schottky plot of LaB_6 emitter

液体金属を用いた電界放射電子源のエネルギー分析

Energy analysis of field emission electron sources using liquid metal

静大院工¹, 静岡大電研²

○(M2)佐藤 宏樹^{1,2}, 根尾 陽一郎^{1,2}, 文 宗鉉^{1,2}

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

◦Hiroki Sato^{1,2*}, Yoichiro Neo^{1,2}, Jonghyun Moon^{1,2}

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

【研究背景】本研究では大電流放出による輝度向上を目的としている。ガリウム液体金属を表面拡散した電界放射陰極（Ga/W-tip）は、放射エリアを変えずに 10mA 以上の安定した電流放射を可能とする。その時の電流密度は 10⁹A/cm²に到達する。[1].W-tip の輝度を決定する主な要因は電流密度である。そして高電流密度はジュール熱により W の融点を超える温度上昇を引き起こし、動作上限を決定する。Ga/W-tip は Ga の気化熱を放熱過程に利用することでエミッションサイトの温度を融点以下の制御を可能とした。これにより従来、W-tip では不可能であった空間電荷制限電流まで到達することを確認した。加えて、3mA を超える空間電荷制限下での長時間動作実験では 100 時間以上の動作に成功した。本報告では,Ga/W-tip のエネルギー分布と理論計算との比較による温度測定の結果を報告する。

【実験・結果】

本研究では,液体金属として Ga 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 リザーバーを付着させた後、10⁻⁷Pa 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、実験を行った.エネルギー分析はリターディング法を用いて行った。スクリーン上のピンホールに電子を通過させ、阻止電位の大きさを調整することで、コレクタでは阻止電位を超えるエネルギーを持つ電子だけが検出される。この時のコレクタ電流からエネルギー分析を行った。

従来の W-tip でエネルギー分析を行った結果を fig.1 に示す図中の表にはエネルギーの分布を正規分布と仮定したときの半値幅を併記している。エネルギー分布幅は電流量とともに広がっていることが確認できた。また,10 μA の測定の際はジュール熱が小さく室温で動作していると仮定すると電子放出はフェルミレベル近傍に限られるため、図中の 5V 付近がフェルミレベルに相当すると考えられる。液体金属電子源について同様の実験を行った結果についても報告する予定である。

【参考文献】

[1] Yoichiro Neo, et al., J. Vac. Sci. Technol. A 41, 063104 (2023) [2] D. V. Glazanov, et al., Zh. Tekh. Fiz. 59(5), 60-68(1989).

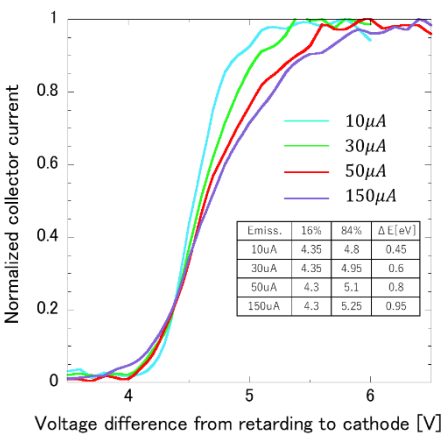


Fig 1: Energy distribution of the W-tip

高温超伝導体からの電界電子放出特性に関する考察

Study on Field-Emission Property from High- T_C Superconducting Materials

阪大基礎工¹, 奈良女子大², 産総研³ 三宅 広士¹, 田邊 詩祐¹, 阿保 智¹,

○ 若家 富士男¹, 岩渕 修一², 長尾 昌善³, 村上 勝久³

UOsaka¹, Nara Women's Univ.², AIST³ Hiroshi Miyake¹, Shiyuu. Tanabe¹, Satoshi Abo¹,

○Fujio Wakaya¹, Shuichi Iwabuchi², Masayoshi Nagao³, Katsuhisa Murakami³

E-mail: wakaya.f.es@osaka-u.ac.jp

1. はじめに

電子源から単色性の高い電子ビームを得るために、超伝導体からの電界電子放出を利用する手法が以前から検討されている [1–4]。Gadzuk は BCS 理論と Fowler-Nordheim 理論を用いて、BCS 超伝導体から電界電子放出された電子のエネルギー分布 (Total-Energy Distribution, TED) を理論的に導いた [1]。Nagaoka らは 実際 に Nb の tip を用いて、超伝導金属から電界電子放出された電子の TED を評価し、実験の都合でブロードになっているものの、Gadzuk の理論と一致する傾向の結果を得ている [2,3]。Nb の nanotip を使って、さらに単色性を向上させた報告もある [4]。しかし、高温超伝導体を用いた実験については、いくつかの報告があるが、超伝導に起因した単色性の向上の報告はない [5–7]。高温超伝導体からの電界電子放出に関する理論の報告もない。そこで、本研究では、高温超伝導体から電界電子放出された電子の TED を理論的に予測することを目的とした。

2. 手法

Gadzuk の理論では、常伝導金属や超伝導金属から電界電子放出された電子の TED は、

$$\text{TED}(\varepsilon) \propto f(\varepsilon) \int d\varepsilon_{\mathbf{k}} A(\mathbf{k}, \varepsilon) \exp\left(\frac{\varepsilon_{\mathbf{k}}}{d}\right) \quad (1)$$

と表される [1]。ここで、 $f(\varepsilon)$ は Fermi 分布関数、 $A(\mathbf{k}, \varepsilon)$ は金属中の電子の Green 関数のスペクトル関数である。また、 d は Fowler-Nordheim 理論に出てくるエネルギーの次元をもったパラメータである。このスペクトル関数をどのように選ぶかによって、常伝導金属や超伝導金属からの TED を求めることができる。高温超伝導体のスペクトル関数については、角度分解光電子分光 (ARPES) によって調べられている [8]。ただ、実験で得られるものはスペクトル関数そのものではないため、式 (1) に直接代入することはできない。そこで、本研究では、ARPES の実験によって得られた高温超伝導体の方向に依存したエネルギーギャップだけを利用して、スペクトル関数の広がり仮定してスペクトル関数を作り、式 (1) に代入することによって、高温超伝導体からの TED を求めた。

3. 結果

報告されている Bi2223 の ARPES の実験結果 [9] を用いて、上述の手法で TED を求めた結果、結晶の方位に依存した TED が得られた。最も単色性の高い電子が放出できるのは、 a 軸から 10° 程度傾いた軸と垂直な面から電子を取り出したときであった。また、 a 軸から 45° 傾いた軸と垂直な面から取り出すと、超伝導性に起因する単色性の向上は期待できないことも分かった。

謝辞 本研究は JSPS 科研費 22H01498, 24K00954 の助成を受けたものです。

文献 [1] J. W. Gadzuk, Surf. Sci., **15**, 466 (1969). [2] K. Nagaoka *et al.*, Nature, **396**, 557 (1998). [3] K. Nagaoka *et al.*, Ultramicroscopy, **79**, 51 (1999). [4] C. W. Johnson *et al.*, Phys. Rev. Lett., **129**, 244802 (2022). [5] S. I. Shkumatov, Surf. Sci., **266**, 88 (1992). [6] S. I. Shkumatov *et al.*, Surf. Sci., **266**, 224 (1992). [7] H. Obitsu *et al.*, e-Journal Surf. Sci. Nanotechnol., **22**, 220 (2024). [8] A. Damascelli *et al.*, Rev. Mod. Phys., **75**, 473 (2003). [9] H. Matsui *et al.*, Phys. Rev. B, **67**, 2 (2003).

Graphene/h-BN/Ni 積層構造平面型電子放出デバイスの開発

Development of a planar-type electron emission device with a graphene/h-BN/Ni stacked structure

産総研¹, 横国大² ○村上 勝久¹, 六川 蓮^{1,2}, 鷹尾 祥典², 村田 博雅¹, 長尾 昌善¹

AIST.¹, YNU², °Katsuhisa Murakami¹, Ren Mutsukawa^{1,2}, Yoshinori Takao², Hiromasa Murata¹ and Masayoshi Nagao¹

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

我々の研究グループでは、金属/絶縁体/半導体積層構造の平面型電子放出デバイスの上部金属電極および絶縁膜中での電子散乱の抑制による放出電子のエネルギー単色化を目的として、上部電極に電子の非弾性散乱断面積が小さく原子レベルの薄膜化が可能なグラフェンを、絶縁層にグラフェンと類似した結晶構造の絶縁体である六方晶窒化ホウ素(h-BN)を用いた Graphene/h-BN/Si 積層構造の平面型電子放出デバイスの開発を推進している[1]。これまでに、Graphene/h-BN/Si 積層構造を用いることで、放出電流密度 9 A/cm^2 と放出電子のエネルギー幅 0.18 eV (半値幅) を達成した[2]。これは、従来最もエネルギー単色性の高い電子顕微鏡用の電子銃であるタングステン冷陰極のエネルギー幅(0.3 eV)を凌駕するエネルギー単色性である。しかし、この研究では h-BN 絶縁層は銅箔に成膜した h-BN を Si 基板に転写して形成していたため量産性に課題があった。そのため、誘導結合型プラズマ化学気相成長法による Si 基板上への多結晶 BN 直接成膜手法を用いて[3]、Graphene/BN/Si 積層構造平面型電子源を試作し電子放出特性の評価を実施した。その結果、放出電流密度 1.25 A/cm^2 の電子放出を確認したが、多結晶 BN 絶縁層でのリーク電流により電子放出効率は 0.0005% 程度と低く、大電流密度動作と高効率電子放出の両立のためには BN 絶縁層の高結晶化によるリーク電流の抑制が重要であることが分かった。

本研究では、サファイア基板上にエピタキシャル成膜した Ni(111)基板上にエピタキシャル成長した高結晶多層 h-BN を絶縁層に用いた Graphene/h-BN/Ni 積層構造の平面型電子放出デバイスを試作した(図 1)。その結果、放出電流密度 6.42 A/cm^2 の大電流密度動作と電子放出効率 2.32% の高効率電子放出の両立を達成した。

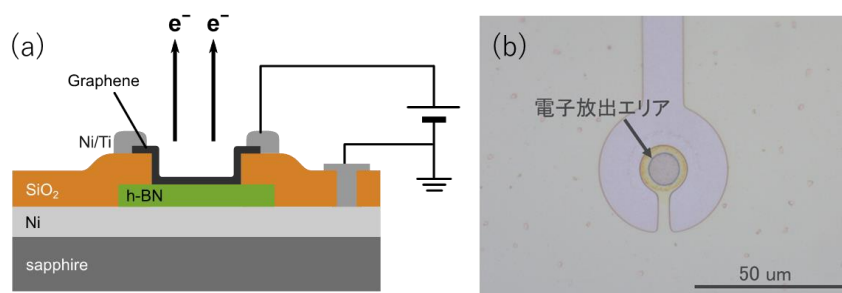


図 1(a)Graphene/h-BN/Ni 積層構造デバイスの模式図、(b)試作したデバイスの光学写真

【参考文献】 [1] K. Murakami et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12**, 4061 (2020). [2] T. Igari et al., *Phys. Rev. Applied* **15**, 014044 (2021). [3] M. Yamamoto et al., *ACS Omega* **8**, 5497 (2023).

電界放出電子源の光源径測定の精度低下要因の検証

Factors causing decreased accuracy in measuring the virtual source size of an electric field emission electron source

日立製作所¹, 日立ハイテク², ○川本絵里奈¹, 松永宗一郎^{1,2}

Hitachi, Ltd., R&D Group.¹, Hitachi High-Tech.², Erina Kawamoto¹, Soichiro Matsunaga^{1,2}

E-mail: erina.kawamoto.rm@hitachi.com

電界放出電子源の光源径は走査型電子顕微鏡(SEM)の空間分解能を決める要因の一つであるが、標準的な実測方法は整備されておらず理論値の実証が困難になっている。このため本発表では、光源計測として、仮想光源(虚像)を試料上に投影する手法を利用した高精度な測定方法を提案する。本来の光源径は投影したビーム径を拡大率で割ることで得られる(fig.1)[1,2]。報告者らはこれまでに、その測定精度の検証方法を提案し、精度が低下する主な原因である拡大率の精度を評価した[3]。今回、その他の測定精度が低下する原因である非点と振動の影響を評価した。

まず非点収差について述べる。非点収差は、光軸と直交する2軸(x、y軸)でビーム径が最小になる収束条件が異なることで生じる収差である。本装置の場合、収束条件は第二コンデンサレンズの励磁電流量を意味する。非点収差がある場合とない場合の収束条件を fig.2(a)(b)中の矢印に示す。非点収差がある場合(fig.2(a))は、ない場合(fig.2(b))と比較して、収束条件のずれが大きく、かつx軸とy軸方向のビーム径の差が大きい。つまり、非点収差により測定精度が低下する。

次は振動について述べる。振動は電気ノイズや機械振動で生じる。振動がある場合、測定するビーム径に振動振幅が重畳されるため、測定精度が低下する。

今回はこの非点と振動振幅の影響を定量評価した。発表では評価方法と結果について報告する。

[1] T. Kawasaki et. al., Ultramicroscopy **202**, 107 (2019).

[2] A. H. V. van Veen et al., J. Vac. Sci. Technol. B **19**, 2038 (2001).

[3] E. Kawamoto et al., Rev. Sci. Instrum. **96**, 063701 (2025).

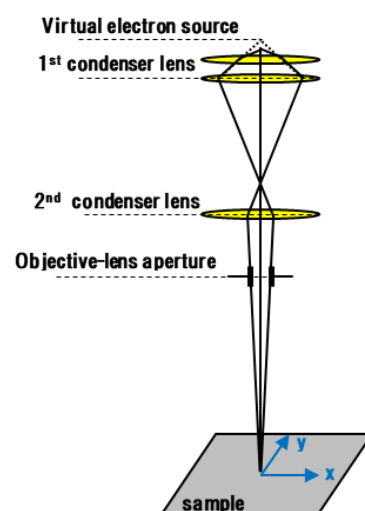


Fig.1. Schematic representation of magnification projection optics

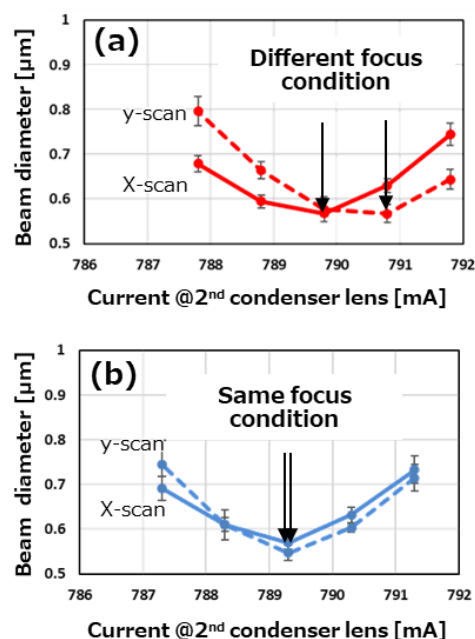


Fig.2. Beam diameters (a) before and (b) after astigmatism adjustment.

熱酸化 CeB₆ からの電界放出の安定性評価

Evaluation of Field Emission Stability from Thermally Oxidized CeB₆

筑波大数理¹ °鶴田 諒平¹, 荒井 元哉¹, 大場 宏祐¹, 山田 洋一¹

Univ. Tsukuba¹, °Ryohei Tsuruta¹, Motoya Arai¹, Kosuke Oba¹, Yoichi Yamada¹

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

[背景] 低仕事関数を有する六ホウ化セリウム (CeB₆) は、新たな低電界放出電子源材料として注目されている。しかし、酸素との高い反応性により安定した電界放出の実現が困難であり実用化には至っていない。我々はこれまでに、加熱による清浄化を施した CeB₆ 表面の仕事関数が酸素暴露により敏感に増加し、1 L の酸素暴露で飽和することを報告した[1]。一方で CeB₆ 単結晶を熱酸化することによって表面が不活性化し、仕事関数が安定化することが明らかになった[2]。また、熱酸化後の表面ではストイキオメトリーの変化が起きる B₂O₃ のサブレイヤーが生成することが示唆された。本研究では熱酸化によって不活性化した CeB₆ からの電界電子放出特性を評価し、電界電子放出電流の安定化を目指した。

[実験] CeB₆ 電界放出エミッター (CeB₆ tip) は棒状の CeB₆ 単結晶を電界研磨エッチングによって先鋭化することで作製した。これを 1×10^{-8} Pa の真空中でフラッシングによって清浄化しサンプルとして用いた。このサンプルを 1×10^{-5} Pa の酸素分圧中で 800°C に加熱することで熱酸化処理を行った。熱酸化後の電界放出パターンおよびその特性を評価した。

[結果・考察] Fig.1 に、CeB₆ tip からの電界放出におけるパターンおよびその特性について示す。Fig.1(a) 図中に示すように清浄な CeB₆ からの電子放出では先行研究[3]同様に(100)が等価な(310)に囲まれた四ツ葉状のパターンを示した。一方で熱酸化後では(310)等価面からの電子放出が弱くなり、その間の(311)面からの電子放出が新たに現れた。これは熱酸化によってストイキオメトリー変化が起こり、仕事関数が低下した新たな面からのエミッションである考えられる。また、熱酸化前後の電流電圧特性を計測したところ、電子放出の閾値電圧が清浄化 tip で、1.00 kV であったのに対して、熱酸化 tip では 0.85 kV となった。また、この電流-電圧特性から Fowler-Nordheim (FN) プロットを作成した。いずれの場合もプロットは直線的であり、電子放出が電界放出によるものであることが確認された。熱酸化後では、FN プロットの傾きが小さくなっており、電界放出効率の向上が示唆される。

さらに、SEM 像からは熱酸化によって tip の形状に変化がないことが確認されており、この効率向上は仕事関数の低下によるものと考えられる。この CeB₆ の熱酸化によって形成されるパッシベーション層と、新たな高効率電子放出サイトを活用することで、CeB₆ を用いた新たな高効率電界放出エミッターの開発に向けた有用な指針が得られる。

- [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] 鶴田、他、第 72 回応用物理学会 春期学術講演会、15p-K507-3 (2025)
 [3] K. Kasuya, et al., Appl. Phys. Lett., 117, 213103 (2020)

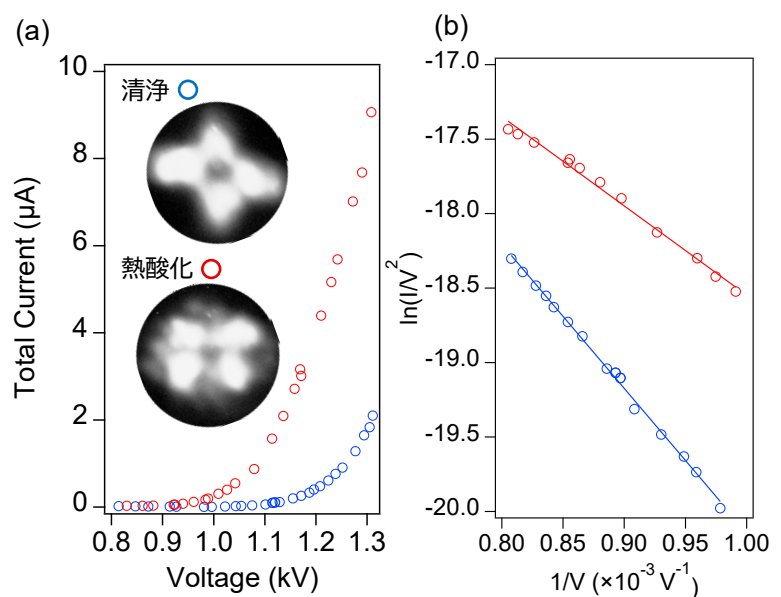


Fig.1. Field emission characteristics from a CeB₆ tip: (a) Current voltage (I-V) characteristics and (b) Fowler-Nordheim (F-N) plot.

有機分子による仕事関数制御を通じたフォトカソードの寿命延伸と量子効率改善 Extending the Lifetime and Improving the Quantum Efficiency of Photocathodes via Work Function Control with Organic Molecules

千葉大融合理工¹, 千葉大先進², 千葉大 MCRC³, 信州大工⁴, 大阪大⁵, 日本触媒⁶
 ○館農 真斗¹, 森山 美優¹, 大原 正裕⁴, 森井 克行^{2,5,6}, 石井 久夫^{1,2,3}, 深川 弘彦^{1,2,3}
 GSSE¹, CFS², MCRC³, Chiba Univ., Eng. Shinshu Univ⁴, Osaka Univ.⁵, Nippon Shokubai Co., Ltd.⁶
 ○Manato Tateno¹, Miyu Moriyama¹, Masahiro Ohara⁴, Katsuyuki Morii^{2,5,6}, Hisao Ishii^{1,2,3},
 Hirohiko Fukagawa^{1,2,3}

E-mail: 25wd2202@student.gs.chiba-u.jp

フォトカソードは光電子増倍管の第一カソードや放射光施設の電子源等、様々な産業・研究機器に必要な構成要素である。この光電変換量子効率 (QE) を向上させるために、仕事関数 (WF) が実用的な元素中で最も低いセシウム (Cs) が広く用いられている。一方、Cs は極めて反応性が高く、そのため多くのフォトカソードは、動作寿命の短さや高真空度を要求する動作環境といった課題を抱えている。特に可視光領域で高い QE を持つ、負の電子親和力 (NEA) フォトカソードは、表面を Cs で低 WF 化する必要があるために、寿命が数十～数百時間程度と極めて短い¹。本研究では、これら問題の根本的な解決を目指し、電極金属と配位結合を形成することで、電荷移動および配向分極による界面分極を形成し、WF を 2 eV 以上減少させることができるフェナントロリン (Phen) 誘導体 (図 1a)²に着目した。この低 WF 表面はダングリングボンドを持たず、Phen 誘導体が広いバンドギャップを持つため、Cs に比べて優れた WF 安定性が期待できる。

本研究では、Phen 誘導体を用いたフォトカソードの特性評価を目的として、超高真空 (UHV) 及び高真空 (HV) の二つの真空環境下での WF と、その時間安定性を測定した。さらに、UHV 環境での QE と光電子放出過程を評価した結果、これらが Cs よりも優れた安定性と高い QE を持つことを明らかにした。

酸化インジウムスズ (ITO) 基板上にアルミニウム (Al) を 1 nm、Phen 誘導体を 3 nm 真空蒸着し、測定サンプルとした。HV での WF の評価には、製膜中の WF を測定できる回転型ケルビンプローブ (RKP) を用い、UHV での WF 評価には、紫外光電子分光 (UPS) を用いた。QE の評価は、ソースメジャー電源と光電子増倍管を用い、7.7–1.5 eV の励起光エネルギー範囲で行った。

RKP を用いて成膜中および成膜後の WF を評価した結果を図 1b に示す。Phen 誘導体の膜厚が 3 nm に達するまで WF は連続的に低下し、*p*-Pyrrd-Phen では 2.2 eV まで低下した。HV 環境下においても Phen 誘導体蒸着表面の WF は安定しているのに対し、Cs では成膜中および成膜後の WF が極めて不安定であることが確認された。また、図 1c に示す通り、*p*-Pyrrd-Phen は 2.7–3.5 eV の波長領域において、Cs の 2 倍以上の QE を示した。これらの結果は、Phen 誘導体の活用により、フォトカソードの長寿命化および動作環境の真空度に対する制約の緩和が可能となることを示唆している。

¹ X. Wang, *et.al.*, *J. Mater. Chem. C* 9(38), 13013–13040 (2021).

² H. Fukagawa, *et.al.*, *Nat. Commun.* 11(1), 3700 (2020).

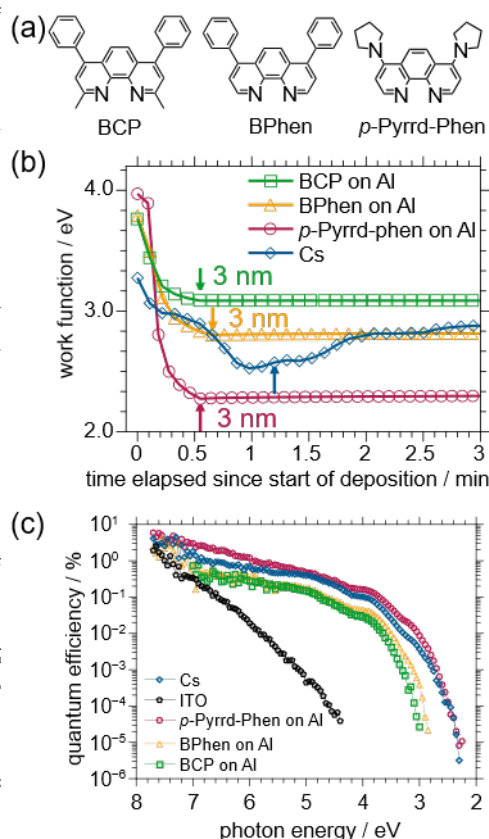


Figure 1. (a) Phen derivatives. (b) Work functions measured by RKP during the deposition of Phen derivatives and Cs onto Al/ITO and ITO in HV conditions. The arrows indicate the end points of the deposition. (c) Quantum efficiencies of bare ITO, Cs deposited on ITO and Phen derivatives deposited on Al/ITO. Adapted from M. Tateno *et.al.*, *Appl. Phys. Lett.* (2025), licensed under CC BY 4.0. © 2025 American Institute of Physics.

フォトカソード形状の違いによる極短パルス電子線の伝播・特性の変化

Differences in propagation and properties of ultrashort pulsed electrons from tip and plate photocathode

筑波大数理¹, CNRS IRL Dynacom² [◦](M1)長尾 梨代¹, Gael Privault¹, 嵐田 雄介¹, 岩崎 ゆい¹,

野山 豪大¹, 藤田淳一¹, Arnaud Arbouet^{1,2}, 羽田真毅¹

Univ. Tsukuba¹, CNRS IRL Dynacom² [◦](M1)Riyo Nagao¹, Gael Privault¹, Yusuke Arashida¹,

Yui Iwasaki¹, Godai Noyama¹, Jun-ichi Fujita¹, Arnaud Arbouet¹, Masaki Hada¹

E-mail: s2520312@u.tsukuba.ac.jp

我々は、高いコヒーレンスを持つ極短パルス電子線を用いて、超分子やたんぱく質などナノメートルオーダーの周期構造を持つ分子・材料の構造ダイナミクス計測を目指している。そのため、コヒーレンス長が 10 nm 程度、パルス幅が 10 ps 程度の超高速時間分解電子線回折装置の開発を通して、実測データと数値シミュレーションの両面から極短パルス電子線の真空中における伝播、電子線の持つ特性（パルス幅、ビーム径、電子密度、コヒーレンス長など）を比較検討している。本発表では、特に数値シミュレーションから得られた本研究で開発している探針型と従来から超高速時間分解電子線回折装置に用いられてきた金属平板型のフォトカソードによる電子線の伝播様式の違いやその特性の違いを明らかにする。

シミュレーションには粒子追跡ソフト ASTRA 及び電場解析用 Python モジュール Netgen/NGSolve を利用した。探針型、金属平板型の両フォトカソードにおいて、電子を針先端またはプレート表面からアノードまでの間で 45 keV まで加速する条件とし、有限要素法により装置内の静電場を計算した。探針型では直径 1 μm の半球状先端表面に、プレート型では平面上に電子の初期分布を配置した。従来型装置ではフォトカソードからサンプルまでの間に磁気レンズは存在しない。一方、探針型フォトカソードを用いた装置では 2 つの磁気レンズを有し、1 つ目のレンズで電子線を平行化、2 つ目のレンズで集光する。これらの磁気レンズ条件はベル型近似磁場を用いて設定した。シミュレーションの結果、サンプル位置における電子線パルスのコヒーレンス長は、探針型で約 10 nm、プレート型で約 2 nm となった。また、電子線パルス幅と電子数の関係は、探針型で電子線パルス幅は電子数の 1/3 乗に比例したのに対し、プレート型では電子数に対して線形に近い増加を示し、異なる空間電荷効果の支配機構を示唆している。これは探針型では三次元的な空間電荷効果が、プレート型では電子線パルスの進行方向への二次元的な効果が支配的であることによると考えられる。以上の結果から、初期電子の放出形態の違いがサンプル位置での電子線特性に強く影響を与えることが明らかになった。透過型電子顕微鏡や走査型電子顕微鏡では探針型のフォトカソードが用いられることが多く、この結果は極短電子線パルスを用いた電子顕微鏡開発へ大きく貢献すると期待される。

金属メタ構造を利用するフォトカソードの開発

Development of Photocathodes Utilizing Metal Metasurfaces

高エネ研¹, 筑波大物理² ○福本 恵紀¹, エリザベス ピアテンコ¹, 豊澤 剛², 久保 敦²
 KEK¹, Univ. Tsukuba², ○Keiki Fukumoto¹, Elizaveta Pyatenko¹, Tsuyoshi Toyosawa², Atsushi Kubo²

E-mail: keiki@post.kek.jp

材料に仕事関数より大きな光子エネルギーをもつ光を照射すると、光電効果により電子を取り出すことができる。本研究では、仕事関数よりも小さなエネルギーであっても、その光が材料表面に大きな電場を誘起することで、効率良く光電効果を誘起する方法を発見した。さらに、電場はナノスケールの局所的に発生するため、この原理は電子線源の集束に適している。

金属メタ構造は、近赤外光領域の光電場周期と共鳴するアンテナとなる。これにより、誘起される自由電子の集団振動を表面プラズモンと呼ぶ。弱い光強度であっても、電子の粗密波である表面プラズモンが誘起する分極振動をナノスケールに集中するようにメタ構造を最適化することで、局所的に大きな電場を発生させることができる。さらに、この局所に光電効果が誘起されやすい構造欠陥が存在すると、膨大な量の光電子が放出される。

図1(a)は、金属メタ構造の模式図である。Si 基板上に厚さ 100 nm の Au 均一膜、その上に厚さ 60 nm の正三角形の Au メタ構造が電子線リソグラフィーでパターンニングされている。一辺の長さが 400 nm、重心距離が 500 nm で、2 次元的に配列されている。

この試料は、780 nm

の波長の光に共鳴することが FDTD 法によるプラズモニックバンド計算により推測されている。正確な共鳴波長を観測するために、入射光の波長を 730 nm から 860 nm まで 2 nm ステップで掃引しながら、光電子顕微鏡を検出器として光電子の放出箇所、また、同時に試料に供給される電流量を計測した。図1(b)の左軸は光電子顕微鏡像から見積もった光電子放出量、右軸は試料に供給された電流量であり、同じスペクトル形状をしている。図中に、励起波長が 780 nm の時の光電子顕微鏡像を示す。図中の明るい点がメタ構造の頂点から放出された光電子である。放出電子線のエネルギー幅が約 40 meV と非常に狭いことが特徴であり、この点からも集束に適した電子線源と言える。

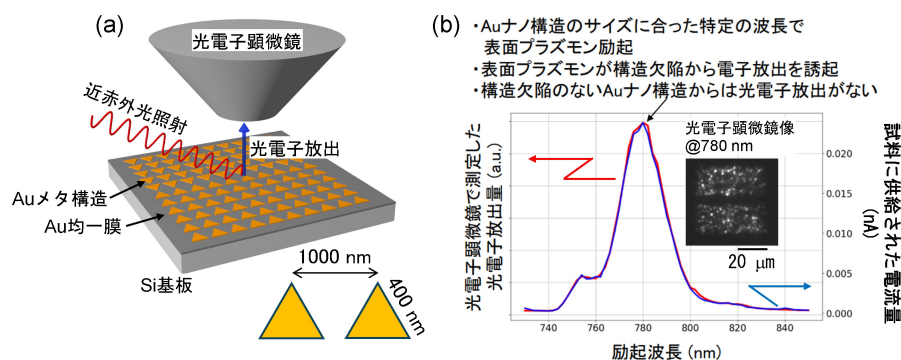


図 1: (a) Au メタ構造と実験手法の模式図。(b) フェムト秒レーザーの波長に依存する光電子放出量 (赤プロット) と試料に供給された電流量 (青プロット)。

[1] 「フォトカソード及びその評価方法」、福本・久保・足立、出願日：2023 年 5 月 17 日、特許番号：第 7629672 号

NEA-InGaN フォトカソードにおける電子ビーム動作時間の現状

Electron beam operating time of NEA-InGaN Photocathodes

PeS¹, 名大未来研² ○小泉 淳¹, 佐藤大樹^{1,2}, 西谷智博^{1,2}, 本田善央², 天野 浩²

Photo electron Soul Inc.¹, IMaSS, Nagoya Univ.²

○Atsushi Koizumi¹, Daiki Sato^{1,2}, Tomohiro Nishitani^{1,2}, Yoshio Honda², Hiroshi Amano²

E-mail: a.koizumi@photoelectronsoul.com

【背景・目的】半導体フォトカソード電子銃は、励起光強度に応じたプローブ電流をナノ秒程度の時間スケールで容易に制御できる[1]。半導体フォトカソード電子銃を搭載した走査型電子顕微鏡(PC-SEM)では、試料の蓄積電荷量を空間的に制御して観察することで、配線することなく MOSFET のデバイス動作を可視化する[2]などを実現し、電子ビームの産業応用に貢献しつつある。その一方で、半導体フォトカソードは、「脆弱な NEA 表面を使うので短寿命」というイメージを持たれている。そこで、本研究では、我々が開発している NEA-InGaN フォトカソードの電子ビーム動作時間、及び、窒素導入によるイオンバックボンバードメントを用いた加速劣化試験の影響を調べた。

【実験方法】フォトカソードに使用した InGaN は、MOCVD 法によりサファイア基板上に成長した[3]。動作時間は、アノード・カソード間距離が約 20 mm の半導体フォトカソード評価専用の電子銃にて励起光強度のフィードバック制御を行い、放出電流を固定して測定した。加速電圧は、10 kV または 5 kV とした。加速劣化試験では、通常動作によるフォトカソードの劣化に時間を要するため、電子銃室が 5×10^{-7} Pa となるようにリークバルブから窒素ガスを導入し、加速電圧 10 kV、電子放出サイズ $\sigma = 1.8 \mu\text{m}$ 、初期ビーム電流 50 μA の制御条件にて数時間動作させ、イオンバックボンバードメントにより劣化を促進させた。その後、電子銃内で加熱洗浄(HC)と Cs, O₂ による NEA 活性化、カソード上の量子効率(QE)分布と高励起密度における QE 測定、加速劣化試験を繰り返して行い、QE の変化を調べた。

【結果】ビーム電流 20 μA (カソード面上での電流密度 196 A/cm² に相当)での QE の時間変化を図 1 に示す。点線は、最大励起パワーでビーム電流を維持できる QE を示している。この試験では、およそ 30 時間維持できていることが分かる。図 2 に放出電荷量に対する動作試験後、及び、各加速劣化試験後の QE の変化を示す。加速劣化試験後は、イオンバックボンバードメントの影響で急激な QE の低下が観察された。その後の加速劣化試験における QE の低下は、0.04%程度で飽和する傾向が観察された。さらに、全ての加速劣化試験後に HC と NEA 活性化して動作試験を行ったところ、10 μA を 30 時間維持した。

[1] D. Sato *et al.*, JVST **B40**, 064204 (2022). [2] D. Sato *et al.*, Proceedings Volume 12955, Metrology, Inspection, and Process Control XXXVIII; 1295529 (2024); DOI: 10.1117/12.3009947 [3] A. Koizumi *et al.*, JVST **B40**, 062202 (2022).

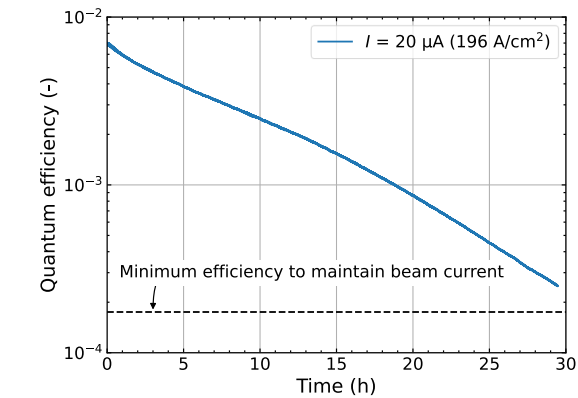


Fig. 1. Quantum efficiency evolution with 20 μA beam current operation.

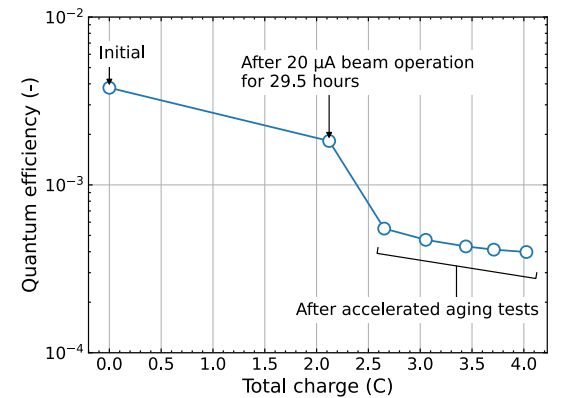


Fig. 2. Dependence of quantum efficiency after NEA activation on total emission charge.

NEA-InGaN フォトカソード電子銃を用いた帯電抑制 SEM 撮像

Charge-reduced SEM imaging by modulating e-beam from an NEA-InGaN semiconductor photocathode

東レリサーチセンター¹, Photo electron soul², 名古屋大学 未来材料・システム研究所³

○安田光伸¹, 西谷智博^{2,3}, 小泉淳², 荒川裕太², 新美浩太郎², 佐藤大樹^{2,3},
石川純久¹, 大塚祐二¹

Toray Research Centre, Inc.¹, Photo electron soul Inc.², Nagoya University³

○Mitsunobu Yasuda¹, Tomohiro Nishitani^{2,3}, Atsushi Koizumi², Yuta Arakawa², Kohtaro Niimi²,
Daiki Sato^{2,3}, Sumihisa Ishikawa¹ and Yuji Otsuka²

E-mail: mitsunobu.yasuda.n3@trc.toray

現在、極めて高い耐久性を持ち、ナノ秒パルス電子ビームが生成可能な GaN 系半導体フォトカソード[1]を搭載した半導体フォトカソード (PC) 電子銃の電子ビーム利用機器への応用が進んでいる。電界放出型電子銃から PC 電子銃に置き換えられた SEM(PC-SEM)により、電子ビーム走査に対してパルス電子ビームによる変調を組み込んだ Digital Selective e-Beaming (DSeB)技術が開発されている[2]。これまで我々は、SEM 撮像時に生じる電子線照射時の電池材料内のフッ素抜けが、PC-SEM を用いたパルス電子ビームによる間欠照射により抑制されることを報告してきた[3]。本間欠照射方式で視野全体の像取得のために、間欠照射のタイミングをピクセル単位でずらした DSeB 技術による SEM 撮像 (二次電子像、Vacc = 0.8 kV) を行った。Figure 1(b)は、視野全体を 9 分割した間欠照射像 9 枚を、照射箇所のみ重ね合わせた SEM 像であり、Pt と Glass の界面が明瞭になると共に、Glass 側で顕著な正帯電による黒色のコントラストが抑制された。

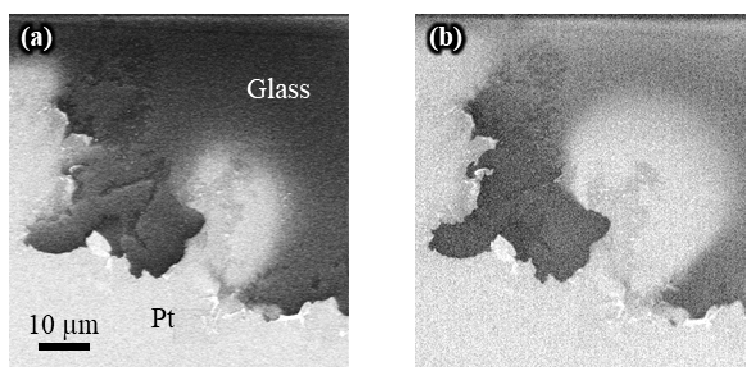


Figure 1. SEM image of a Pt thin film with defects on glass (scanning speed 200 ns/pix):

(a) continuous electron beam image and (b) composite image of nine delays from pulsed imaging in which only one pixel out of nine was electron irradiated.

[1] T. Nishitani et al., J. Vac. Sci. Technol. B 32, 06F901 (2014).

[2] T. Nishitani et al., J. Vac. Sci. Technol. B 40, 064203 (2022).

[3] 石川純久ら, 日本顕微鏡学会第 80 回学術講演会 3amF_I-2-02 (2024).

c 面サファイア基板上 AlGaAs 分子線エピタキシャル成長層の 結晶構造評価

Crystal structure of AlGaAs Molecular Beam Epitaxially Grown on c-plane Sapphire

北大情科院¹, 北大量集セ², フォトエレクトロンソウル³

○(M1)和島 颯汰^{1,2}, (D)橋本 英李^{1,2}, 佐藤 大樹³, 小泉 淳³, 西谷 智博³, 石川 史太郎²

Hokkaido Univ.¹, Hokkaido Univ. RCIQE.², Photo electron Soul Inc.³

○Sota Wajima^{1,2}, Hidetoshi Hashimoto^{1,2}, Daiki Sato³, Atsushi Koizumi³,

Tomohiro Nishitani³, Fumitaro Ishikawa²

E-mail: wajima.sota.d0@elms.hokudai.ac.jp

サファイアは紫外から赤外まで高い光学的透明性を示し、その機械的強度、高温安定性、絶縁性と相まって、フォトンクスやエレクトロニクスの多様な用途への応用が期待されている。一方、GaAs は直接遷移型の半導体材料であり、優れた光源として広く利用されている。サファイアと III-V 族半導体は熱膨張係数が近く、GaAs は Si より高い電子移動度を持つ。最近 Kumar らは、サファイア基板上に高品質の GaAs を成長させることに成功した[1]。彼らの方法は、成長の初期段階で AlAs バッファ層を採用し、その後の GaAs の成長を最適化した。AlGaAs は一般に GaAs よりも高い成長温度で形成できるため、サファイア基板上へのヘテロエピタキシャル成長に有利に働くと期待される。本研究では、GaAs よりもバンドギャップが大きく、良質なヘテロ接合を形成する可能性のある AlGaAs をサファイア基板上に成長した試みについて報告する。

サファイア(0001)基板上に分子線エピタキシー(MBE)法で $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ を成長させ、その結晶特性と表面形態を評価した。成長は、基板温度 650°C の熱処理後、 560°C で 5nm の AlAs バッファ層を成長し、 730°C で $\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ 層 (厚さ 30 nm, 100 nm, 200 nm, 500 nm) を成長させた。 θ - 2θ X 線回折測定の結果から、AlGaAs(111)回折ピークが観察され、サファイア基板上にエピタキシャル成長された薄膜形成が示唆された。また AlGaAs(022)面を測定対象として Φ スキャンを行った結果、基板配向を反映してエピタキシャル成長した AlGaAs(111)面に特徴的な三回対称性を示した。加えて AlGaAs(022)ピークの間に微小なピークが確認され、一部に双晶欠陥が存在することが示唆された。

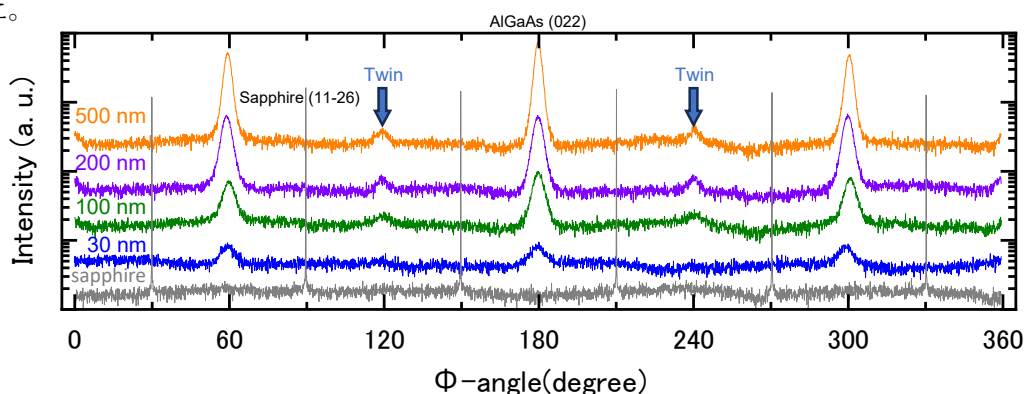


Figure 1. Off-Axis phi scan of AlGaAs(022) and Sapphire(11-26)

1. R. Kumar et al., Cryst. Growth Des., 23, 7385 (2023).

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

[10p-N403-1~11] 7.3 微細パターン・微細構造形成技術

[10p-N403-1]

対向放物面鏡大パターン投影露光の解像度に関する検討

○堀内 敏行¹、岩崎 順哉¹、小林 宏史¹ (1.東京電機大工)

[10p-N403-2]

EB / 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
への有機配位子と金属コア構造の効果

○山本 洋揮¹、室屋 裕佐²、岡本 一将²、下田 周平³、古澤 孝弘² (1.量研高崎、2.阪大産研、3.北大)

[10p-N403-3]

ニュースバル放射光施設でのOoB反射率計の開発

○貫里 拓未¹、早勢 直紀¹、山川 進二¹、原田 哲男¹ (1.兵庫県大)

[10p-N403-4]

EUVレジスト評価のための電子線照射装置の開発

○(M1)山崎 隆一¹、早勢 直紀¹、山川 進二¹、原田 哲男¹ (1.兵庫県立大学)

[10p-N403-5]

段差を有する基板への回転塗布後レジスト表面の凹凸形成メカニズム

○鹿浜 康寛¹、本多 孝好¹、萩本 賢哉¹、白鳥 英² (1.ソニーセミコンダクタソリューションズ株式会社、2.東京都市大)

[10p-N403-6]

ヘリウムイオンビーム照射による極薄シリコンナノシートへの直接ナノ加工

○森田 行則¹、井上 憲介²、杉江 隆一²、小川 真一¹ (1.産総研、2.東レリサーチセンター)

[10p-N403-7]

電子線リソグラフィにおけるネガ型レジストの現像初期過程の分子動力学解析 (2)

○多田 皓星¹、田中 琉暉¹、若松 大翔¹、安田 雅昭¹ (1.阪公大院工)

[10p-N403-8]

UVナノインプリント成型の分子動力学シミュレーションの開発

○若松 大翔¹、平井 義彦¹、安田 雅昭¹ (1.阪公大院工)

[10p-N403-9]

溶解性UV硬化樹脂を用いた金属リフトオフによるナノパターン作製

○(M1)藤枝 聖¹、大幸 武司²、大門 幸生²、谷口 淳¹ (1.東理大先進工、2.東洋合成工業)

[10p-N403-10]

溶解性UV硬化樹脂を用いたナノ形状金箔作製

○小川 泰知¹、大幸 武司²、大門 幸生²、谷口 淳¹ (1.東理大先進工、2.東洋合成工業)

[10p-N403-11]

遮光膜付きNILモールドを用いた銀インク転写プロセスの改善

○芦田 拓望¹、谷口 淳¹ (1.東理大先進工)

対向放物面鏡大パターン投影露光の解像度に関する検討

Research on Resolution of Rough Patterns Printed by Projection Lithography

Using Faced Paraboloid Mirrors

東京電機大工 °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. はじめに

任意の緩曲面に 50-500 μm 線幅の大パターンを簡便安価に形成するため、対向回転放物面鏡を用いる立体面投影露光を検討中である。これまでに、外径約 150mm、高さ約 50mm のマジックミラー玩具を用いて、200 μm 線幅の正方格子等の簡単なパターン形成して来た。本報告では、解像度とその支配要因について検討した。

2. 解像度の決定要因

半導体集積回路製造用の投影露光装置を用いた微細パターン形成では、一般に投影光学系の収差が無いと仮定し、1:1 ラインアンドスペース(L&S)パターンの解像度を、開口数 NA を決定要因として考える。しかし、 $w=50-500\mu\text{m}$ L&S の回折角 ϕ は、露光波長が $\lambda=405\text{nm}$ のとき、 $\phi \doteq \sin\phi = \lambda/2w = 4.05-0.405\text{mrad} = 0.23-0.023^\circ$ の小角度となるため、回折光はすべてミラーの範囲内に当たって結像に使われ、NA は主要因とならない。一方、対象とした光学系には収差があり、レチクルの一点から出た光線はミラーのどこで反射して結像面に達するかにより行き先が異なり、像がぼける¹⁾。コリメート光で照明する対策を講じたが、コリメート誤差があると、パターンがぼける。そのため、収差による光線ずれが解像度を律すると考えられた。

3. 光線傾角によるぼけの推測と実際の解像度

研究では、レチクルを仰角 55° で右下から左上方向にコリメート LED ライト(LBF-LX 40AUV, ダイナテック)を用いて照明した。実際の光線は、上下(仰角方向)および手前・奥(ヨー方向)にわずかに広がるが、光束の境界は裾を引き不明瞭なので、レーザービームの径を決める時のように、光束中心の最大光強度の $1/e^2$ となる位置での光束径の違いを光線の広がりとして測定した。その結果、光軸方向の距離約 200mm に対して、左右と手前・奥の光線広がり(の平均値は片側約 1mm)であった。角度に換算すると、約 $5\text{mrad} \doteq 0.3^\circ$ なので、この角度の光線仰角および手前・奥の光線傾きの変化に対する像位置の変化すなわち像ぼけを計算した。

12mm 角領域で歪が最大となる右上下隅のぼけを図 1 に示す。x 方向が左右、y 方向が手前・奥方向のぼけであり、値は仰角と手前・奥の光線傾き各 0.3° によるぼけの合計値である。50-100 μm 線幅では、回折角が 0.1° 以上となるので、図 1 のコリメート誤差の $2/3 \sim 1/3$ 程度のぼけがさらに加わると予想している。

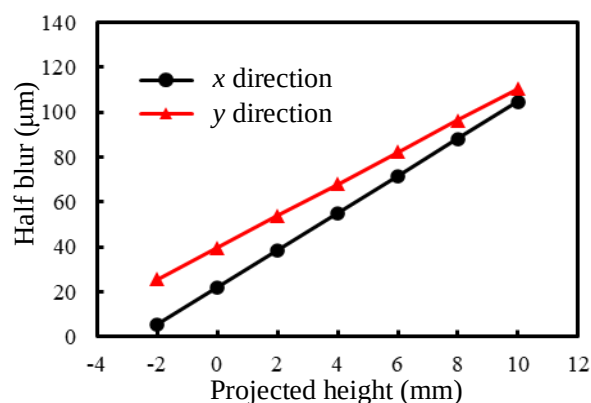


Fig. 1 Half blur caused by 0.3° collimation error.

Half blur が遮光部幅の半分以上になると解像しにくくなると考えられる。実際、図 2 に示すように、200 μm L&S は深さ 8.3mm のスプーン凹面に転写できたが、100 μm L&S は結像面付近の狭い面積にしか転写できなかった。

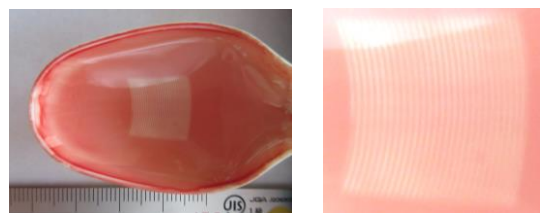


Fig. 2 Actually printed 200- μm L&S patterns.

4. まとめ

コリメート誤差による傾斜光が像のぼけを生じ、解像度を左右すると考え、その量を計算した。また、計算したぼけの値から推測した解像限界が実際と大略一致することを確認した。

- 1) T. Horiuchi, J. Iwasaki, and H. Kobayashi: JJAP. 63, 03SP92 (2024).

EB / 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 への有機配位子と金属コア構造の効果

Effect of Organic Ligand and Metal Core structure on Lithographic Characteristics of Organic-Inorganic Hybrid Resists for EB and EUV Lithography

量研高崎¹, 阪大産研² °山本 洋揮¹, 室屋裕佐², 岡本 一将², 下田周平³, 古澤孝弘²

QST¹, SANKEN Osaka Univ.², Hokkaido Univ.³

°Hiroki Yamamoto¹, Yusa Muroya², Kazumasa Okamoto², Shuhei Shimoda, 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、極端紫外線 (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、10 nm 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、金属コアと有機配位子から成る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。以前の研究で金属コアがレジスト性能に影響を与えることが明らかになった。本研究では、金属コアと有機配位子のレジスト性能への影響を調べるため、新たな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し、薄膜を形成した。その後、EUV 露光装置や電子線露光装置で照射し、シクロヘキサノンで現像し、感度曲線および微細パターンを作製した。

Fig. 1 は Zr の金属コアおよびリガンドがチグリン酸 (TiA) 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、以前に合成したメタクリル酸 (MMA) (4 mJ/cm²) よりも感度が高いことが明らかになった。Fig. 2 は Zr から成る金属コアおよびリガンド TiA から成る有機無機ハイブリッドレジストの 20 nm のラインアンドスペースパターンの SEM 画像である。合成した Zr から成る金属コアおよびリガンドが TiA 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、および触媒科学計測共同研究拠点共同利用・共同研究に基づき実施された (課題番号 24DS0621)。

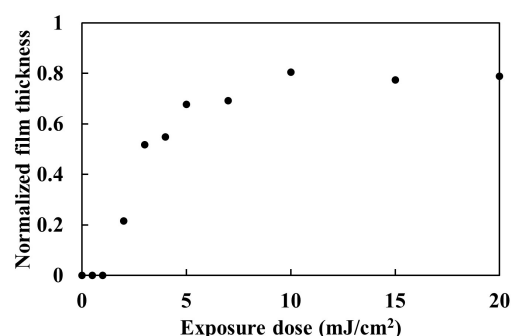


Fig.1. Sensitivity curves of Zr-based organic-inorganic hybrid resists upon exposure to EUV.

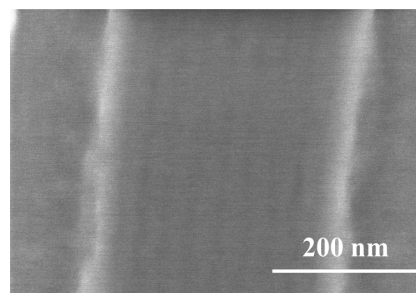


Fig.2. Top-down SEM micrographs of line & space patterns delineated on Zr-based organic-inorganic hybrid resists upon exposure to EB.

ニュースバル放射光施設での OoB 反射率計の開発

Development of Out of Band Reflectometer for EUV Lithography at NewSUBARU

兵庫県立大学、貫里拓未、早勢直紀、山川進二、原田哲男

Univ. of Hyogo, Takumi Nukisato, Naoki Hayase, Shinji Yamakawa, Tetsuo Harada

E-mail: nu20020904@gmail.com

EUV リソグラフィーで利用されるレーザー生成プラズマ (LPP) 光源には、露光に使用する EUV 光だけでなく紫外から赤外領域を含む幅広いスペクトルを放出する。特に紫外線は光学素子やマスクに反射されレジストを感光する迷光となる。これはアウトオブバンド (OoB) 光と呼ばれ波長領域は 140~300 nm である。露光の際に OoB 光が入ると転写されるパターン像のコントラストが低下し、歩留まりが悪化する。光学素子の OoB 光に対する特性を知り、OoB 光を低減することは EUV リソグラフィーの歩留まり向上に非常に重要である。本研究ではニュースバル放射光施設 BL-3 に設置された反射率計を用いて光学素子の OoB 光に対する特性評価を行った。ニュースバル放射光施設 BL-3 の概略図を Fig.1 に示す。本装置は光源から放出された光を上流のミラーで集光、及び平行化し、その光を回折格子で分光、単色化している。幅広い波長領域を分光できるため高次光カットフィルターとして LiF 結晶をサンプル上流に挿入している。そのため 105~210 nm は高次光なしの測定が可能である。

測定したサンプルの反射率のグラフを Fig.2 に示す。Si ウエハが本報告のサンプルの中では最も高反射率で OoB 領域でミラーとなる光学特性を持っている。EUV 反射防止のため s めに利用される SiO₂ は 140 nm よりも短波長側で構造が確認でき、反射率も Mo/Si ML よりも高くなっている。また、Mo/Si ML のコンタミの有無により 140 nm 付近を境にスペクトルに変化が確認できた。コンタミありだと 140 nm より短波長側で反射率が上昇し、長波長側で低下している。カーボン単層膜は短波長側で反射率が高くコンタミの主成分はカーボンであるため、カーボンコンタミが Mo/Si ML コンタミありの 140 nm より短波長側で反射率が落ちる原因であると考えられる。今後は有効測定波長領域の拡大、散乱測定系の構築を検討している。

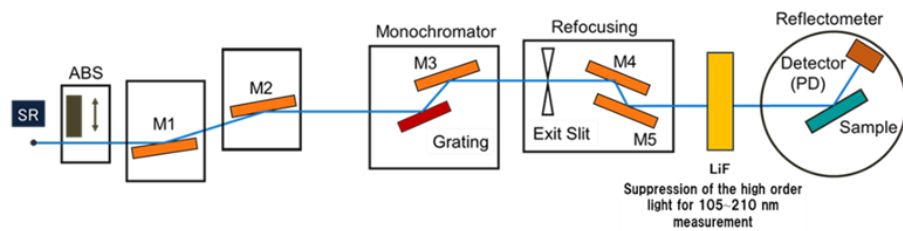


Fig.1 Schematic layout of OoB Reflectometer.

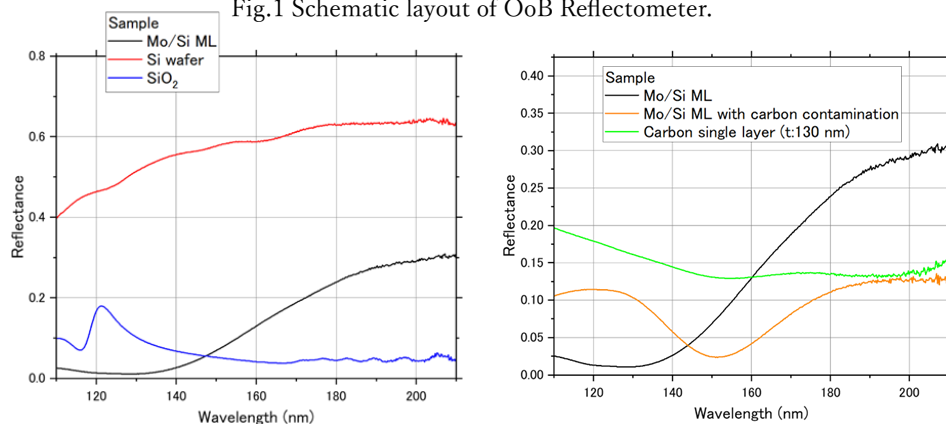


Fig.2 Results of reflectance measurements.

EUV レジスト評価のための電子線照射装置の開発

Development of Electron Exposure Tool(LEEFET) for EUV Resist Evaluation

兵庫県立大学 ○(M1)山崎隆一, 早勢直紀, 山川進二, 原田哲男

University of Hyogo, Ryuichi Yamasaki, Hayase Naoki, Shinji Yamakawa, Tetsuo Harada

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

半導体微細加工技術として EUV リソグラフィーが利用され、次の技術として光子エネルギー 185 eV ($\lambda = 6.7$ nm) の Beyond EUV リソグラフィー (BEUV) の開発が進められている。半導体パターンを形成するレジストに EUV を照射すると、光とレジストが相互作用するだけでなく、そこで生じた二次電子もレジストの化学反応に寄与する。しかし、BEUV におけるレジストへの電子の挙動はほとんど理解されていない。本研究では、低エネルギー電子線照射装置を使用し、レジストに対する BEUV 照射時の電子の挙動の理解のために種々の照射エネルギーの電子線照射実験を行ったので報告する。電子銃から放出される電子線はシリコンウエハ上に塗布されたレジストに照射される。電子線の Dose 量はビーム強度を一定にし、ステージの移動速度を制御することで照射時間を変え、Dose 量を変化させた。Fig.1 に異なる照射エネルギーの電子線を照射した結果を示す。185 eV の電子線では、91.8 eV の場合と比較して約半分の Dose 量で同程度の膜厚減少値が得られた。これは照射エネルギーが 2 倍になったために二次電子の放出総量が増加し、少ない照射時間でもレジストの反応が進行したと考えられる。Fig.2 に Fig.1 における電子線照射の結果を EUV および BEUV 露光結果を重ねて示す。横軸は Dose 量 ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$) から Dose 量 (mJ/cm^2) へと変換した。電子線の照射エネルギー 91.8 eV と 185 eV のグラフはほぼ一致した。しかし、EUV と BEUV の露光結果を比較すると、同じ膜厚減少率を得るための Dose 量が BEUV は EUV の約 6 倍であった。したがって照射エネルギーの同じ電子と光では Dose 量と膜厚減少値の関係が異なることが分かった。レジストの主成分である炭素に対する BEUV の吸収断面積が EUV の 1/5 倍であることが知られており、Fig.2 より BEUV の感度は EUV の約 1/6 倍であることから、吸収係数の差の分だけ感度が異なる。以上の結果から、このレジストでは電子の反応効率は同じで、吸収係数の差が BEUV と EUV の感度の差に影響していることが分かった。

1) Y. Peng, P. Chen, H. Chen, Y. Si, X. Peng, *Smart Mol.* 2024, e20240043.

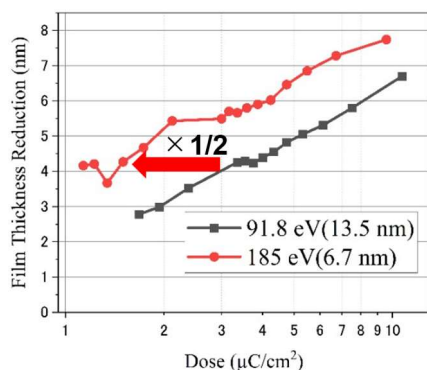


Fig. 1 : Comparison of electron beam exposure energies of 91.8 eV and 185 eV.

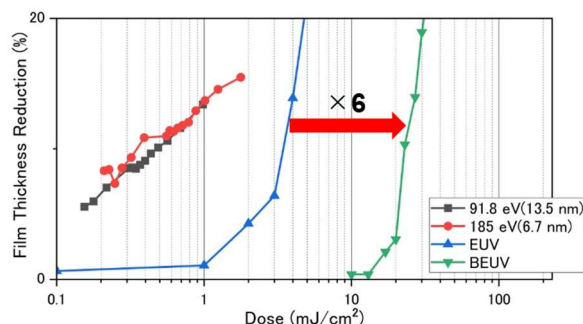


Fig. 2: Comparison of electron beam exposure and photo exposure.

段差を有する基板への回転塗布後レジスト表面の凹凸形成メカニズム

Mechanism of Surface Roughness Formation of Resist after Spin Coating on Step Substrates

ソニーセミコンダクタソリューションズ (株)¹, 東京都市大学²

○鹿浜 康寛¹, 本多 孝好¹, 萩本 賢哉¹ 白鳥 英²

Sony Semiconductor Solutions Corp.¹, Tokyo City Univ.²

○Yasuhiro Shikahama¹, Takayoshi Honda¹, Yoshiya Hagimoto¹, Suguru Shiratori²

E-mail: Yasuhiro.Shikahama@sony.com

1.はじめに

高い塗布膜厚の均一性と生産性の観点から、回転塗布は主に半導体プロセスのリソグラフィプロセスで広く用いられている。成膜とパターン形成を繰り返す半導体プロセスでは、段差を有する基板へレジストを回転塗布する必要があるが、この際、段差に起因した凹凸がレジスト膜に形成される。後続のパターン形成工程において、この凹凸によるレジストの局所的な膜厚差がパターン寸法の精度や均一性の低下を引き起こす^[1]。しかし、このレジスト表面の凹凸形成メカニズムを体系的に説明した研究は少ない。そこで、本研究では、これを扱える流体シミュレータ^[2]を使用し、段差を有する基板へレジストを回転塗布した際のレジスト凹凸形成メカニズムを検討した。

2.検討内容

高さ $0.29\ \mu\text{m}$ 、幅 $2\ \mu\text{m}$ (ピッチ $6\ \mu\text{m}$) の段差が形成された基板に $0.73\ \mu\text{m}$ の膜厚でレジストを回転塗布した際のレジスト膜の断面形状を計算した。計算はレジスト液を非圧縮性ニュートン流体として扱い、層流のナビエ・ストークス方程式と連続の式を潤滑理論で近似した計算モデルを用いた。この計算モデルを用いて、レジストの回転塗布中の過程を、初期の流動工程と終期の乾燥工程の 2 つの工程に分けて、それぞれ固有の物理現象を加味して、レジストの断面形状を液膜の膜厚分布として求めた。

3.結果及び考察

流動工程の計算結果を Fig. 1 に示す。幅 $2\ \mu\text{m}$ の段差が基板にあるにも関わらず、平坦な断面形状になることが確認できた。これは遠心力よりラプラス圧の影響が相対的に大きくなるためである。

次に、乾燥工程の計算結果を Fig. 2 に示す。流動工程では平坦な塗布形状になった段差(Fig. 1)において、乾燥工程(Fig. 2)では下地

に沿ったコンフォーマルな凹凸が形成されることが確認できた。これは、基板に段差があることで、基板段差の下段よりも上段の方がレジストの溶質濃度が高くなり、レジスト中の溶媒の蒸発速度に差が生じるためである。

以上より、幅 $2\ \mu\text{m}$ の段差を有する基板へレジストを回転塗布した際に形成されるレジスト膜の凹凸は、乾燥工程で形成されることが分かった。

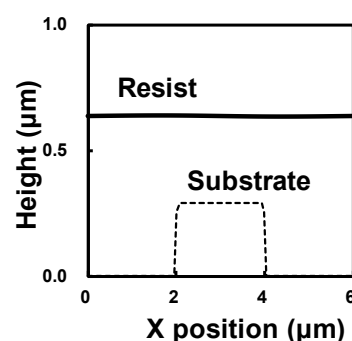


Figure 1. Calculated cross-section profile after the “flow” step.

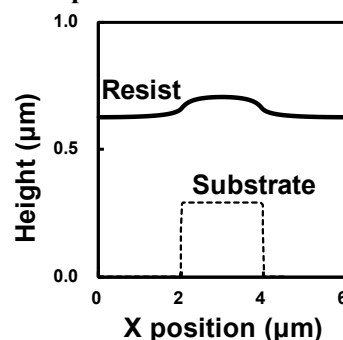


Figure 2. Calculated cross-section profile after the “dry” step

参考文献[1] S. Decoster *et al.*, J. Vac. Sci.

Technol. B **36**(3), (2018).

[2] Shiratori, S *et al.*, Physics of Fluids, **27**(10), (2015).

ヘリウムイオンビーム照射による極薄シリコンナノシートへの直接ナノ加工

Direct nano-lithography in Ultrathin Silicon Nanosheets Utilizing Helium Ion Beam Irradiation

産総研¹、東レリサーチセンター² ○森田行則¹、井上憲介²、杉江隆一²、小川真一¹

AIST¹, TRC² ○Y. Morita¹, K. Inoue², R. Sugie², S. Ogawa¹

E-mail: y.morita@aist.go.jp

はじめに: 先端トランジスタ材料としてのシリコンは微細化による性能向上が限界に達している。しかしサイズ効果が創出する「ナノ加工」領域での新たな物理現象を用いた性能向上・新機能化の余地は充分残されている。これまでグラフェンなど二次元材料に対して、ヘリウムイオン顕微鏡(HIM)技術を用いたナノ加工による導電性・熱電導性制御の研究を行ってきた[1]。HIM は収束させたヘリウム(He)イオンビームを試料に照射し発生した二次電子を用いて対象試料を画像化する装置であるが、He⁺イオン照射量を増大していくことにより数 nm 領域の材料物性制御(改質)、エッチング加工を行うことも可能である。しかしながらシリコンにおいてナノ加工を実施した例はほとんどなかった。本研究では、極限まで薄膜化したシリコンナノシートを対象試料として用いることで、二次元材料と同様に収束 He イオンビーム照射による nm レベルの加工がシリコンにおいても可能かを検証した。

実験および結果: 実験には(100)方位のシリコン・オン・インシュレーター(SOI)試料を酸素によるエッチングでおよそ 1~3 nm 程度まで薄膜化したものを用いた[2]。He⁺イオンビームは約 0.35 nm に収束、加速電圧 30 keV とし、ドーズ量を変調することによる加工形状の変化、欠陥発生に関し検討した。形状変化はHIMで試料の二次電子像により評価した。

Fig. 1 は 7 nm 矩形ドットを 30×30 個、32.6 nm ピッチで照射した試料表面の HIM 像である。シリコンナノシートの膜厚は 1.6nm である。He⁺イオンビーム照射位置には、照射パターンに一致した輝点が観察されている。照射パタンの位置のシリコンナノシートの断面 TEM 像である。照射パターンを反映したシリコンナノシートと、ナノシートが消滅した領域が観察されている。収束 He イオンビーム照射により極薄シリコンナノシートの直接加工が可能であることを示す結果である [3]。

謝辞: HIM 装置の運用に関し、産総研先端半導体研究センター飯島智彦氏に感謝致します。本研究は JSPS 科研費 22K18799 の支援を受けたものです。

[1] F. Liu et al., Nano Futures 5 (2021) 045002. [2] Y. Morita et al., IEDM 2015, 390. [3] Y. Morita et al., Jpn. J. Appl. Phys. 64 (2025) 03SP57.

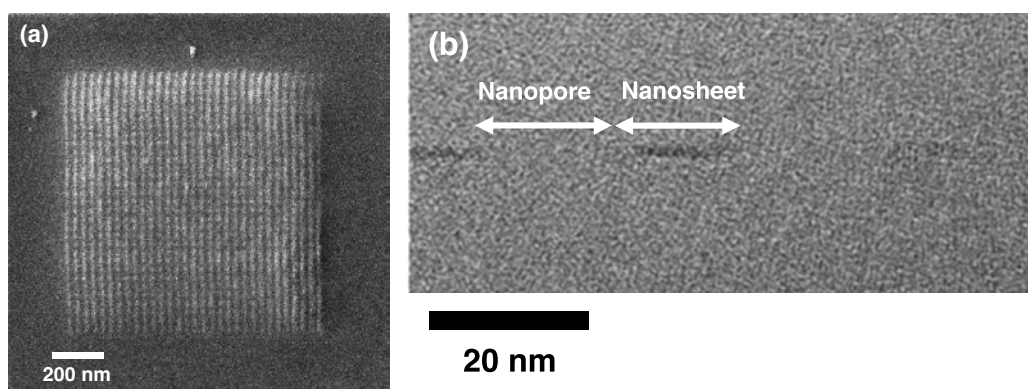


Fig. 1 HIM patterned image on 1.6-nm-thick SOI. (b) Magnified X-TEM image of the nanopore array. A nanopore with 33-nm pitch can be identified.

電子線リソグラフィにおけるネガ型レジストの 現像初期過程の分子動力学解析 (2)

Molecular dynamics study of early stages of development process

for negative type resists in electron beam lithography (2)

阪公大院工, ○多田 皓星, 田中 琉暉, 若松 大翔, 安田 雅昭

Dept. of Physics and Electronics, Osaka Met. Univ.

○Kosei Tada, Ryuki Tanaka, Hiroto Wakamatsu, Masaaki Yasuda

E-mail: yasuda.masaaki@omu.ac.jp

はじめに 現在のリソグラフィ技術ではパターンサイズがレジスト分子の大きさと同程度になってきており、パターン形成の解析にも分子レベルのシミュレーションが求められる。我々は、ネガ型レジストを対象に電子線リソグラフィにおける現像過程を再現する分子動力学解析について報告した[1]。本研究では、レジストの現像過程をより詳細に解析するため、現像におけるレジスト分子のサイズ依存性や重合度の分散依存性を中心に解析した結果を報告する。

シミュレーションモデル ネガ型レジストとして PGMA (Poly(Glycidyl Methacrylate)) を対象とした。PGMA レジストの初期構造モデルを作成し NPT アンサンブルにおいて温度 300 K で緩和した。次に、現像液分子として MEK (Methyl ethyl ketone) と IPA (Isopropyl alcohol) の分子構造モデルを作成し、それぞれ、PGMA レジストモデルの上に配置した後、NVT アンサンブルにおいて温度 500 K での緩和を行い、PGMA レジストの現像過程の分子動力学解析を行った。

シミュレーション結果 重合度が 5、10、15 の単分散の PGMA レジストについて現像中の溶解分子数の現存時間依存性を解析した結果を Fig.2 に示す。重合度の増加とともに溶解分子数は大きく減少している。また、重合度 5 と 20 の PGMA を混在させたレジストを MEK 中において約 15 ns 間緩和させた系のスナップショットを Fig.2 に示す。PGMA 分子の溶解を見やすくするために MEK 分子は表示していない。重合度 20 の単分散の PGMA 分子はこの時間では溶解されないが、重合度が小さな分子を混在させることにより溶解されることが確認できた。この結果は現像における分子量分散の重要性を示唆するものと考えられる。

[1] 田中他: 2023 年応用物理学会秋季学術講演会, 20a-A501-5.

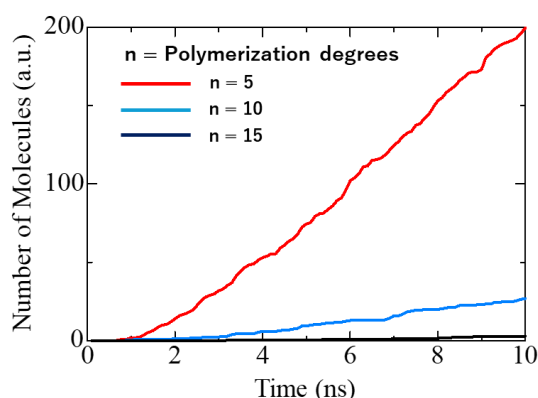


Fig.1 Number of removed molecules as a function of development time for various polymerization degrees.

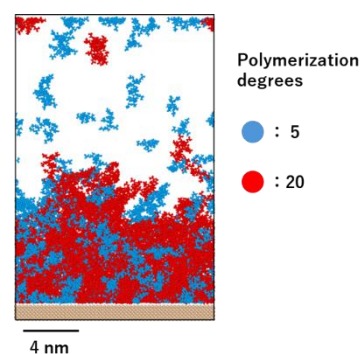


Fig.2 Snapshots of PGMA resist with polymerization degrees of 5 and 20 mixed during development with MEK.

UV ナノインプリント成型の分子動力学シミュレーションの開発

Development of Molecular Dynamics Simulation of UV Nanoimprint

阪公大院工, °若松 大翔, 平井 義彦, 安田 雅昭

Osaka Metropolitan Univ., °Hiroto Wakamatsu, Yoshihiko Hirai, Masaaki Yasuda

E-mail: yasuda.masaaki@omu.ac.jp

はじめに UV ナノインプリントにおいて成型サイズがナノスケールになると光硬化性樹脂の物性の変化などが顕著となり成型不良などの問題もより複雑となる。このようなスケールにおける課題解決のためのシミュレーション解析では分子動力学法が有効な手法となるが、UV ナノインプリントでは UV 硬化反応の再現の困難さのため熱ナノインプリントに比べて分子動力学解析がほとんど報告されていない。本研究では UV ナノインプリントを対象に樹脂の充填、硬化、離型のすべての過程を再現する分子動力学シミュレーションを開発したので報告する。

シミュレーションモデル 本研究における光硬化性樹脂は C-TGC-02 (東洋合成工業) とした。樹脂は反応開始剤と多官能反応系のモノマーで構成されている。樹脂をモールドキャビティに充填後、UV 硬化過程では反応開始剤の反応半径内のモノマーの反応部と確率的に結合を生成させた。その後、結合した分子は活性化し、反応半径内のモノマーに結合することで重合反応が進行するものとして多官能反応系における光硬化反応を再現した。その後、硬化後の樹脂を離型した。以上の過程を GAFF (Generalized AMBER force field) ポテンシャルに基づく分子動力学シミュレーションにより実施した。

解析結果 硬化前のモノマーの分子構造モデルと開発したシミュレーションによって計算された光硬化反応後の樹脂のスナップショットを Fig.1 に示す。硬化後の樹脂の赤い線は重合反応による結合を表し、連鎖反応の経路を可視化できている。また、反応開始剤の濃度が 10[wt%]と 5[wt%]の場合における転換率の反応時間による変化を Fig.2 に示す。転換率は時間とともに増加するが、反応開始剤の割合が低下することによって収束する転換率が低下する傾向を再現できている。発表では、充填および離型過程についても報告する。

謝辞 光硬化反応に関してご教示頂きました東洋合成工業の大幸武司氏に感謝いたします。

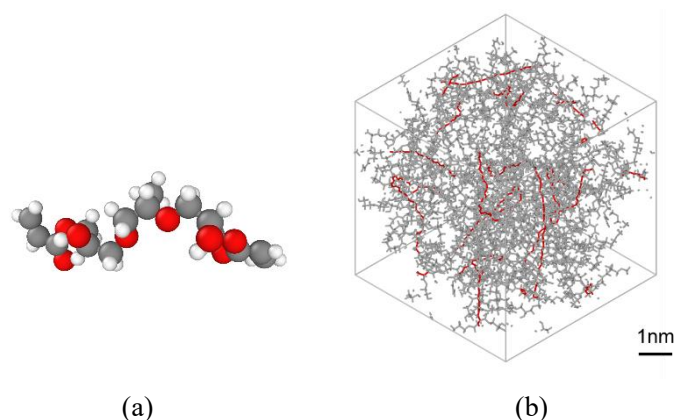


Fig.1 Snapshots of (a) monomer and (b) UV-cured resin.

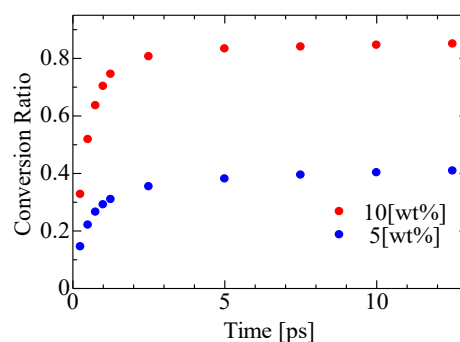


Fig.2 Conversion ratio as a function of reaction time.

溶解性 UV 硬化樹脂を用いた金属リフトオフによるナノパターン作製

Fabrication of fine metal patterns using solvent-soluble UV-curable resin and lift-off process

東京理科大学¹, 東洋合成工業², 藤枝 聖¹, 大幸 武司², 大門 幸生², 谷口 淳¹

¹Tokyo University of Science, ²Toyo Gosei Co., Ltd.,

[○]Satoshi Fujieda, Takeshi Osaki, Yukio Okado, Jun Taniguchi

E-mail: 8125532@ed.tus.ac.jp

1. 緒論

ナノスケールにおける金属構造の形成技術は半導体製造技術の発展に伴い重要性を増している。例えば、金属触媒を用いたウェットエッチング法はシリコン基板上にナノ構造を形成するための簡便な手法として注目されており、Au/Ni を用いた Si の化学エッチングにおける微視的な反応挙動を明らかにしている[1]。しかし、このようなエッチングプロセスでは、形状の非均一性、材料選択性の制御といった課題が依然として残されている。そこで、エッチングを伴わず選択的な金属除去が可能なリフトオフ法がある。無機材料に対するナノインプリントリソグラフィにおいて、リフトオフ法が高いパターン再現性と構造整合性があり、微細構造への応用可能性が高いことも示している[2]。本稿では、UV 照射によって硬化する一方で、有機溶剤によって容易に除去可能な溶解型 UV 硬化樹脂 PAK-YY01(東洋合成社製)を使用し、微細な金属パターンの作製を行ったので報告する。

2. 実験方法

実験方法を図 1 に示す。まず、線幅が 200 nm でピッチが 400 nm のラインアンドスペース (L&S) 形状の離型処理した金型に PAK-YY01 を滴下し、コスモシャイン A4300(東洋紡(株)製)を被せ、平行平板 NIL 装置を用いて 100 N の荷重で 5 min の加圧を行った。この荷重を維持しつつ、UV 光を照度 50mW/cm² で 30 s 間照射した。続いて、転写したフィルム上に金の蒸着を行った。最後に、このフィルムを ZED-N50 (日本ゼオン) に 1 min 浸し、リフトオフを行い、PAK-YY01 上の金を除去した。

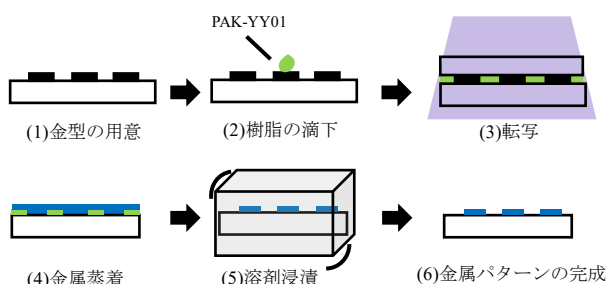


図 1. UV-NIL から金リフトオフプロセスの流れ

3. 実験結果

金型のパターンの線幅とパターン間の幅を図 3(a), (b) に示し、203.6 nm, 201.1 nm, 高さは 275.6 nm であった。この金型から PAK-YY01 を滴下し、PET フィルムに転写した様子を図 3(c), (d) に示す。パターンの線幅とパターン間の幅は 206.2 nm, 206.1 nm, 高さは 242.3 nm であった。転写の前後で、パターンの高さに約 30 nm の差があった。これは UV の硬化収縮によるためである。最後に金を蒸着し、リフトオフ後の様子を図 3(e), (f) に示す。金属のパターンの線幅とパターン間の幅は、200.3 nm, 182.2 nm, 高さは 125.0 nm であった。リフトオフの前後で、パターン間に約 20 nm の差があった。これは金を PET フィルム上に蒸着するときの熱変形の影響と考えている。

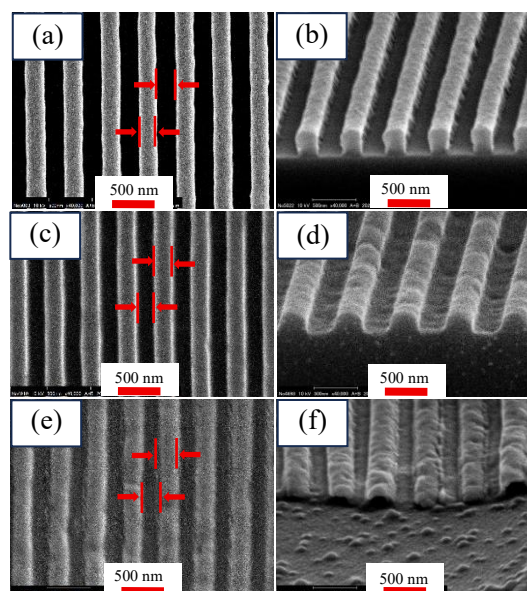


図 2. (a),(b)金型のパターンの様子 (c),(d)PET フィルム上に転写した後の様子 (e),(f)リフトオフで金を除去した様子

4. まとめ

金の微細な金属パターンの作製と、その工程を導き出すことができた。選択的に蒸着時間や金属を容易にできると考えられる。また、今回は Au での金属パターンを作製したが、金属の種類に応じて材料特性が異なるため、その検討と評価をしていく。

参考文献

- [1] Xidu Lenga, Chengyong Wanga, Zhishan Yuana*, Progress in metal-assisted chemical etching of silicon nanostructures, Applied Surface Science, 2025, vol. 696, 1, July 2025, 162915.
- [2] Mehrnaz Modaresialam, Zeinab Chehadi, Thomas Bottein, Marco Abbarchi, David Grosso*, Nanoimprint Lithography Processing of Inorganic-Based Materials, ACS Applied Materials & Interfaces*, vol. 33, 2021, pp. 5464–5482.

溶解性 UV 硬化樹脂を用いたナノ形状金箔作製

Fabrication of nano-shaped gold foil using solvent-soluble UV-curable resin

東理大先進工¹ 東洋合成工業² ○(M1)小川 泰知¹, 大幸 武司², 大門 幸生², 谷口 淳¹

Tokyo Univ. of Science¹, Toyo Gosei Co., Ltd.²,

○Taichi Ogawa¹, Takeshi Osaki², Yukio Okado², Jun Taniguchi¹

E-mail: junt@te.noda.tus.ac.jp

UV ナノインプリントリソグラフィ(UV-Nanoimprint Lithography: UV-NIL)は^[1, 2], 高解像度かつ高精度なパターン形成を実現するナノインプリントリソグラフィ(NIL)の手法であり, 半導体製造や光学系デバイスの分野において重要な役割を果たしている。UV 硬化樹脂を塗布し, パターンのあるモールドを基板に押し付けることでパターンを転写することができる。元のモールド(マスターモールド)があれば, 安価で大面積のバッチ処理が可能であり, また UV 照射により短時間で樹脂が硬化することから, 高い生産効率(スループット)を実現する。本研究では, 溶解性 UV 硬化樹脂(PAK-YY01, 東洋合成工業)を用いて, UV-NIL でナノスケールパターンを金箔に転写した。

Fig.1 に金箔作製方法を示す。まず, 200 nm L&S マスターモールドに PAK-01-CL を滴下し, コスモシャイン(フィルム)に転写した。次に, コスモシャインに Cr 蒸着を行い, オゾン照射して完全に酸化させた。さらに, その上から Au 蒸着を行い, これをレプリカモールドとした。レプリカモールドに PAK-YY01 を滴下し, モールド上にある 200 nm L&S 金箔を, フィルムに転写した。フィルムを溶剤に浸すことで PAK-YY01 を除去し, ナノパターンのある金箔を作製した。

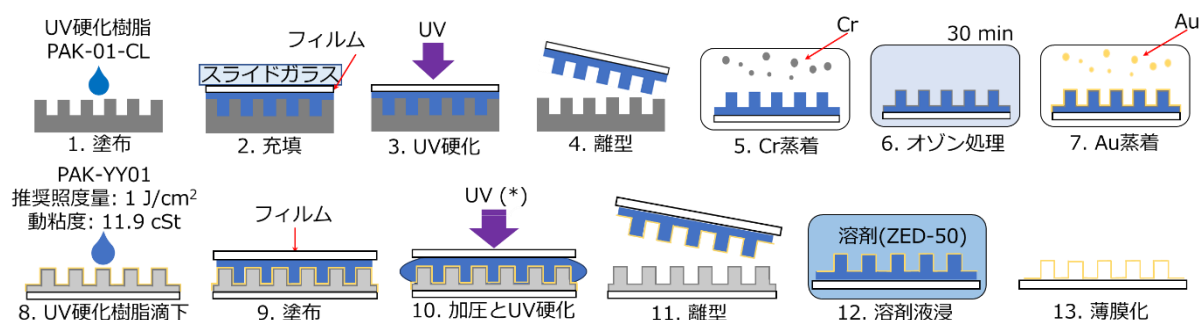


Fig. 1 Gold leaf fabrication method

Fig.2 に作製した金箔を示す。PAK-YY01 を溶かし, パターンのある金箔を作製できた。ライン幅は 237 nm であり, マスターモールドの幅よりも大きくなったが, これは Au の膜厚が影響していると考えられる。

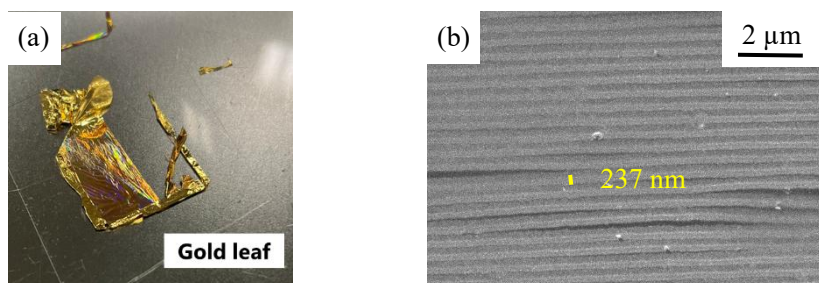


Fig.2 Gold leaf with nanoscale patterns. (a): Gold leaf after melting PAK-YY01. (b): Gold foil with nanoscale patterns.

[1] S. Y. Chou et al., *Appl. Phys. Lett.* **67**, 3114 (1995).

[2] S. Y. Chou et al., *J. Vac. Sci. Technol.* **B15**, 2897 (1997).

遮光膜付き NIL モールドを用いた銀インク転写プロセスの改善

Improvement of silver ink transfer process using NIL mold with light shielding film

東京理科大学 ○芦田 拓望, 谷口 淳

Tokyo University of Science, ○Takumi Ashida, Jun Taniguchi

E-mail: 8125501@ed.tus.ac.jp

1. 緒論

精密加工法の進歩は、回路の集積度に影響を与えており、現在、加工法の精度だけでなく作業効率も求められている。ナノインプリント(NIL)[1]は、スループットが高く安価な量産化技術として注目されているが、残留膜の除去などが課題になっている。残膜の課題は、CNP 法(Combined Nanoimprint Photolithography)[2]によって解決される。通常の CNP モールドは、真空蒸着やエッチング工程などで高真空引きが必要になるが、本研究では、真空引きを用いることなく CNP モールドを作製した。CNP モールドを用いた転写パターンは、現像処理で残膜を除去できるため、フォトリソグラフィ用の銀インクと CNP モールドを用いて、配線転写を行うことが可能になる。フォトリソグラフィ用の銀インクを NIL に用いる際、基板との密着性が悪い。本研究では、CNP モールドを用いて銀インクパターンの転写を行うプロセスを、スループットの高さに加えて、転写精度の面から最適化を行った。

2. 実験方法

初めに CNP モールドの作製方法を図 1 に示す。まず、Si 基板上に SU-8 で作製したマスターモールド (L/S 幅: 5 μm , ピッチ: 15 μm) に、金属ペースト (Smart Screen F, GenesInk Inc.) を充填させた (図 1(a))。スキージ後に 150°C、5 分で焼成することにより、金属ペーストを硬化させるとともに、金属ペーストが持つ体積収縮性能を利用し、上部と底部の金属を分離させた (図 1(b))。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、上部に残った金属ペーストを除去した (図 1(c))。上部に金属ペーストが残っていると、パターンも現像で流れてしまう。最後に、UV 硬化樹脂 (PARQIT OEX-028-X433-3, Autex Co., Ltd.) で転写を行い、底部に残留した金属ペーストを掬い取った (図 1(d))。以上の工程によって、凸部に金属の遮光層が形成された NIL レプリカモールドを得た (図 1(e))。

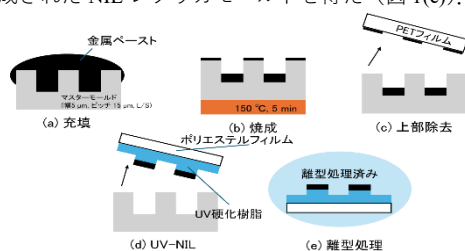


図 1. CNP モールド作製方法の概略図

このモールドの離型処理には、85°C30 分の加熱を行い、フッ素系離型剤 (OPTOOL DSX-E, Daikin Industries, Ltd.) で気相・液相処理ともに行なった。

レプリカモールドを用いて、感光性導電ペーストを用いたパターンの作製方法を図 2 に示す。まず、転写基板にシリコンオイル(KBM-503, Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.)でシランカップリング処理を行い、モールド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、LTIL によって余剰なペーストを取り除いた (図 2(b))。その後、転写基板にモールドを載せ、加圧し、モールド側から UV を照射した (図 2(c))。離型後(d), Na_2CO_3 溶液を用い

て現像を行い、純水でリンスすることで未硬化のペーストを取り除いた (図 2(e))。

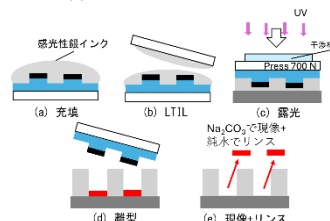


図 2. 微細配線形成方法の概略図

3. 実験結果

遮光膜付きモールドを、観察した結果は、図 3(a)のようになった。モールドを用いて転写した銀インクのパターンは、図 3(b)のようになった。高さはそれぞれ、CNP モールドでは 6.7 μm 、銀インクパターンは 8.1 μm となった。モールドに対

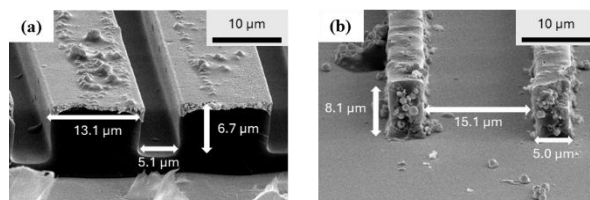


図 3. CNP モールドの SEM 観察結果

して転写パターンの高さは、高くなっており、増加率は、21 %であった。結果から、CNP モールドを用いて転写すると、転写パターンの縦寸法は、CNP モールドの高さよりも大きくなると考えられる。パターンが高くなる要因は、現像前の残膜であると考えられる。転写パターンにおける高さは、モールドの高さに、残膜の高さを加えたものになっているため、パターンの高さがモールドよりも高くなったと考えられる。

転写成功率はシランカップリング処理をする前が 23 %前後であったのに対して、処理後は、図 4(a)のようになり 90 %前後であった。同様の処理を行い、1 本の配線パターンを作製したところ、図 4(b)のようになり、抵抗率が 34 k Ω であった。

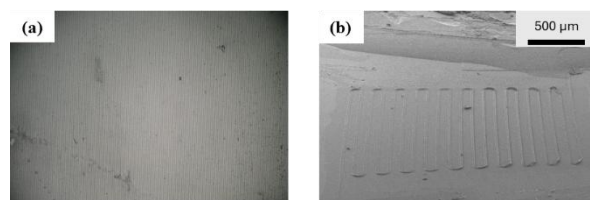


図 4. 感光性導電ペーストを用いたパターンの SEM 観察結果

4. まとめ

本研究では、基板と銀インクの密着性を改善し、転写精度を向上させた。開発したプロセスを用いて、銀インクの配線パターンを作製し、導電性があることを確認した。

参考文献

- [1] S. Y. Chou et al., J. Vac. Sci. Technol. B14(1996)4129-4133.
- [2] X. Cheng, L. J. Cho, Microelectron. Eng. 71(2004)277-282.