

機関番号：14401

研究種目：若手研究 (A)

研究期間：2009～2010

課題番号：21686005

研究課題名 (和文) 絶縁物からの二次電子放出機構の解明と二次電子収率データベース構築

研究課題名 (英文) Study on Secondary Electron Emission from Insulator and Construction of Database of Secondary Electron Yield

研究代表者

永富 隆清 (NAGATOMI TAKAHARU)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：90314369

研究成果の概要 (和文)：

エキソ電子検出システムの開発を進めると共に、パルスイオン照射システムを開発・改良し、絶縁物の二次電子収率測定系を開発してその測定精度を向上させた。さらに絶縁物の実材料におけるガス吸着等による二次電子収率の変化を測定するシステムを構築し、収率変化を定量的に捉えることに成功した。また、二次電子データベース構築等については、日本学術振興会産学研究協力委員会である第141委員会内に設置した専門委員会において、材料・デバイスを製造している企業等と連携した研究活動を行った。

研究成果の概要 (英文)：

We have been developing the exoelectron detection system, and we have succeeded to develop and improve the accuracy of the measurement of the secondary electron yield from insulators by developing and modifying the pulsed-ion beam irradiation system. In addition, we developed the experimental system to measure the variations in the secondary electron yield of practical materials, which are induced by the gas absorption on the sample surface and/or heating the sample. We succeeded to develop the system to quantitatively measure the change in the secondary electron yield of practical materials. Furthermore, we established the working group for the construction of the database of the secondary electron yield in the 141st committee on Microbeam Analysis of Japan Society for the Promotion of Science, and started activities relating to the database construction with the committee members belonging to industrial companies.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	4,600,000	1,380,000	5,980,000
2010年度	3,200,000	960,000	4,160,000
年度			
年度			
年度			
総計	7,800,000	2,340,000	10,140,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・薄膜・表面界面物性

キーワード：二次電子, 絶縁物, エキソ電子

1. 研究開始当初の背景

固体表面からの二次電子放出現象が再び世界的に注目を集めている。それは、主に産

業界での材料・デバイス開発において、二次電子放出現象の理解がなければ、今後の開発や評価が立ち行かなくなっていることが背

景にある。申請者は特に、プラズマディスプレイパネル (PDP) 用保護膜からのイオン誘起二次電子・エキソ電子放出現象について調べてきた。今後の PDP 開発においては、絶縁物である MgO 保護膜について、帯電状況下での二次電子・エキソ電子放出現象の解明が不可欠である。しかしながら帯電現象そのものが理解されておらず、帯電状況下での電子放出現象は未解明である。その他、走査電子顕微鏡 (SEM) によるデバイスや材料の評価においても、デバイス等の微細化やナノ材料の開発が進むに従って、試料の帯電が問題となることや、これまでの理解では観察像を解釈できないことなどが多数報告されるようになってきた。さらに多くの材料において、二次電子放出特性と電子状態が相関を持つと考えられることから、材料等の二次電子収率測定による評価も強く求められており、絶縁物の収率測定に加えて、二次電子収率データベースの構築も必須となっている。

しかしながら、このような地道な基礎研究は欧米を中心に進められており、我が国では殆ど研究が行われていない。そこで申請者は、絶縁物からの二次電子放出現象を中心に研究を行ってきた。その結果、新しい二次電子検出装置の開発や、帯電に関連する物理量の実時間計測法の開発、帯電と電子放出に関する新しい知見を得ることなどに成功してきた。

2. 研究の目的

以上の背景を踏まえ本研究では、

- (1) 低導電性材料からの二次電子放出過程の解明
- (2) 実材料の電子状態評価のための二次電子収率測定法の開発
- (3) 低加速 SEM における二次電子像形成過程の解明
- (4) 二次電子収率のデータベース構築を推進することを目的とした。

3. 研究の方法

以上の研究内容 (1)～(4) を推進するために、それぞれの事項について、以下のようなアプローチで研究を進めた。

(1) 及び (2)

低導電性材料からの二次電子放出過程を解明するために、まず、帯電を抑制した二次電子収率測定に有効であるパルスイオン照射による収率測定系の開発を行った。この収率測定系を用いて絶縁物、特に PDP 用 MgO 保護膜を中心に二次電子収率を測定するための測定条件を検討した。さらに実際の PDP 用 MgO 膜製造工程を再現できる試料処理系を構築し、MgO 膜からの電子放出へ製造工程が与える影響などを調べた。

また、帯電した状態からの二次電子やエキソ電子放出過程を調べるための、PDP テスト

パネルを特別に試作した。この PDP テストパネルを用いて、帯電した状態にある PDP 用 MgO 絶縁体保護膜表面からの放電時の二次電子及びエキソ電子放出現象について、帯電蓄積電荷量との相関を調べた。

(3) 及び (4)

これらの項目については、日本学術振興会産学協力研究委員会の第 141 委員会内に設置した「二次電子収率データベース専門委員会」(申請者が主査としてとりまとめ) を中心に活動を行った。標準試料や試料ホルダー、データベース、更には二次電子放出現象など、多くの課題について委員会で議論を行い、ラウンドロビンテストの条件等も検討した。

4. 研究成果

研究内容 (1)～(4) に対して以下のような成果が得られた。

- (1) 低導電性材料からの二次電子放出過程の解明
- (2) 実材料の電子状態評価のための二次電子収率測定法の開発

①低導電性材料からの二次電子収率を帯電を抑制して測定するために、パルスイオン照射による収率測定系の開発を行った。システムとしては幅数十 ms のパルスイオン (電流は数十 nA) を照射して収率を測定でき、図 1 に示す通り、それまで困難であった、絶縁性薄膜 (膜厚数十 nm) の二次電子収率をイオン照射による帯電を抑えて測定することに成功した。さらにイオン銃駆動電源の調整精度を改善するための改良や実験手順の最適化、電流ではなく電荷による放出二次電子量計測などを行うことで、膜厚 50nm 程度までの高絶縁性膜に対して、定量測定の再現性を 5 倍程度向上することに成功した。

②絶縁物の二次電子収率測定では、現在 PDP 開発において大きな課題である、PDP 製造工程中の MgO 膜へのガス吸着や加熱行程が二次電子収率へ与える影響を調べた。このような実材料に対する収率を測定するために PDP 製造工程を再現できる測定系を構築し、①で述べた測定条件の最適化等を行った。図 2 は測定結果の一例で、加熱温度による MgO 膜の二次電子収率の変化を調べた結果である。行程による収率の変化を定量的に捉えることに成功した。

また図 3 は、PDP 製造工程において最も起こり得る MgO 膜への H₂O 吸着による収率変化を調べた結果である。H₂O 吸着によって Ne⁺イオンに対する収率は殆ど変化しないが、Xe⁺イオンに対する収率は大きく変化することがわかった。これはイオン誘起二次電子放出

過程に起因し、イオン化エネルギーが低く二次電子が放出されにくいXe⁺イオンの方がH₂O吸着によるわずかな表面状態の変化の影響を受けているためであると考えられる。このような表面へのガス吸着による二次電子収率の変化は予想されてはいたものの、本研究のように定量的に捉えられた報告はない。

現在は、表面形態や組成の変化なども総合的に評価できる実験系の構築を進めている。

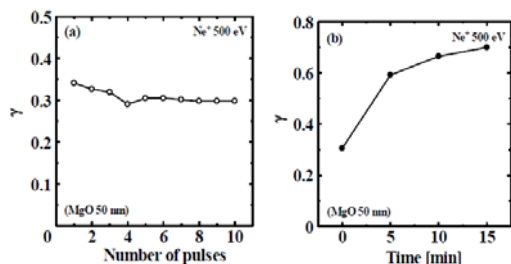


図1 (a)パルス及び(b)連続イオン照射による as-received MgO 膜の二次電子収率の測定。(a)ではパルスごとに帯電が進行して収率が変化する様子を捉えられている。(b)では測定中に急激に帯電が進行しており、特に(a)で見られた初期の収率の変化(減少)は捉えられていない。

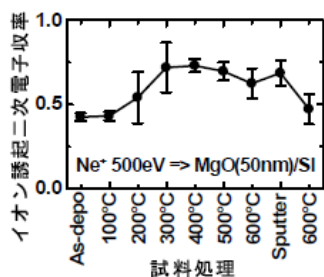


図2 加熱による MgO 膜の収率の変化。

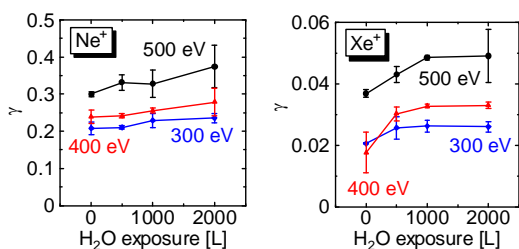


図3 MgO 膜への H₂O 吸着によるイオン誘起二次電子収率γの変化。

③帯電した状態からの二次電子やエキソ電子放出過程を調べるために、図4に示す、一般のPDPで採用されている3電極面放電型とは異なる2電極対向放電型の2インチのPDPテストパネルを特別に試作した。この構造を採用することで、MgO絶縁体保護膜表面上に蓄積される電荷を制御しながら、放電時に二

次電子やエキソ電子が放出される過程を調べることに成功した。

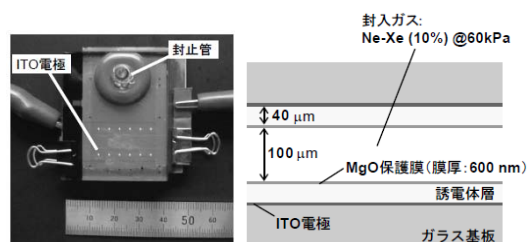


図4 対向放電型2インチテストパネル。パネルは前面及び背面ガラス基板から構成され、周囲はガラス材料で封着されている。内部に放電用ガスが封入されている。ガラス基板にはITO電極、その上に誘電体層が形成され、その上に誘電体をプラズマエッチングから保護するためのMgO保護膜が成膜されている。ITO電極へ電圧を印加することで放電空間内で放電が起こる。このときMgO膜表面からイオン誘起二次電子やエキソ電子が放出されて放電が起きる。

④上述したテストパネルを用いて、対向ITO電極間へ印加する電圧を制御してMgO膜表面へ蓄積される電荷を制御しながら、帯電したMgO表面からの電子放出を調べた。図4は得られた結果の一例で、MgO膜上へ蓄積される電荷によってどのように放電電圧、すなわちイオン誘起二次電子放出量が変わるかを調べた結果である。一般にはMgO膜表面に負の電荷(電子)が蓄積されている方が表面近傍に電子が多く、二次電子も多く放出されると考えられているが、本結果から、二次電子放出量が蓄積された電荷(誘起される電圧 V_{wall})の極性に依存しない、という、一般的な予想と反する新しい知見が得られた。

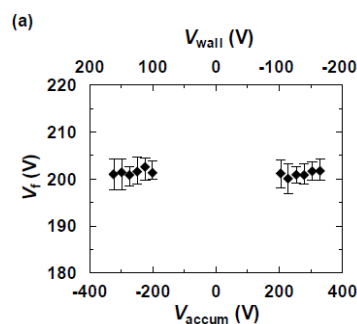


図4 MgO表面に蓄積される電荷(誘起される電圧が V_{wall})と放電電圧 V_f の測定結果。 V_f が低いほど二次電子放出量が多い。蓄積電荷の極性が正(負)の場合[正孔(電子)が蓄積されている]は誘起される電圧 V_{wall} の極性が正(負)になる。

またエキソ電子放出についても、従来の予想とは反する二次電子放出と同様の傾向が

あることも明らかにした。本テストパネルを用いた測定で得られた結果をもとに、PDPの駆動波形の設計指針について、多くの新しい知見が得られた。

(3) 低加速 SEM における二次電子像形成過程の解明

(4) 二次電子収率のデータベース構築

これらの項目については産業界との連携が不可欠であることから、日本学術振興会第141委員会内に申請者が主査として設置した「二次電子収率データベース専門委員会」での議論等を中心に活動を行った。絶縁物からの収率測定法としてチャージアンプを用いた高精度測定法について共同研究を実施している。主要委員が実施している収率測定等、二次電子放出現象の研究に関して議論を続けている。また収率データベース構築に向けた標準試料の選定、測定法や測定レシピの検討、試料ホルダーの検討など、多くの課題について専門委員会委員で活動を行っている。本活動については、日本顕微鏡学会の「SEMの物理学」研究部会から連携した活動を行いたいとの要請もあり、連携を開始した。

個人研究として得られた成果は国内、国際会議等での招待講演なども行い、新たに韓国の電機メーカーからの共同研究の提案があり、現在契約を進めている。また専門委員会における活動については、多くの企業との連携に加えて顕微鏡学会内の部会との連携、さらには海外研究者からの活動への参画の要請もあり、国際的にも広がりつつある。このように国内外において、特に産業界からの強い要請があり、地道で基本的な学術的研究ではあるが、産業界にとっても大変重要であることを再認識した。

今後の展望として、現在までに立ち上げたパルス照射による測定系をより高速化、高精度化することで、より導電性の低い材料の二次電子収率測定と評価が可能になると考えている。さらに新たに制御系を構築することで、二次電子収率だけでなく二次電子スペクトルを高速で計測できる世界で唯一のシステムを構築できると考えている。これらのシステムを構築できれば、収率の高精度な計測だけでなく、帯電の過渡現象を調べることができ、帯電現象の解明と絶縁物からの電子放出について新たな一歩を踏み出せると考えている。また収率データベースについては、委員会活動を継続することで産業界で役立つデータベース構築を実現できると考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に

は下線)

[雑誌論文] (計 16 件)

- (1) K. Yoshino, Y. Morita, T. Nagatomi, M. Terauchi, T. Tsujita, T. Nakayama, Y. Yamauchi, "Investigation of Measurement Conditions of Metastable De-excitation Spectroscopy of MgO Thin Films Used for Plasma Display Panels", *Journal of Surface Analysis* (in press) (査読有) .
- (2) K. Yoshino, T. Nagatomi, Y. Morita, T. Oue, N. Kosugi, M. Nishitani, M. Kitagawa, and Y. Takai, "Improvement in Discharge Delay Time by Accumulating Positive Wall Charges on Cathode MgO Protective Layer Surface in Alternating-Current Plasma Display Panels", *Japanese Journal of Applied Physics* Vol. 50, 026201-1/10 (2011) (査読有) .
- (3) T. Nagatomi and S. Tanuma, "Surface Excitations in Surface Electron Spectroscopies Studied by Reflection Electron Energy Loss Spectroscopy and Elastic Peak Electron Spectroscopy", *Analytical Science* Vol. 26, 165-176 (2010) (査読有) .
- (4) T. Nagatomi and K. Goto, "Surface Energy Loss Processes in XPS Studied by Absolute Reflection Electron Energy Loss Spectroscopy", *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* Vol. 178-179, 178-185 (2010) (査読有) .
- (5) J. D. Lee, T. Nagatomi, G. Mizutani, and K. Endo, "Photoemission Electron Spectroscopy III: Satellites by Extended Excitations", *Journal of Surface Analysis* Vol. 16, 196-213 (2010) (査読有) .
- (6) T. Nagatomi, Y. Nakanishi, and Y. Takai, "In Situ Observation of Change in Surface Atomic Arrangement of Sc-O/W(100) System during Phase Transition at High Temperature", *Journal of Vacuum Science and Technology A* Vol. 28, 199-206 (2010) (査読有) .
- (7) K. Yoshino, T. Nagatomi, Y. Morita, T. Oue, N. Kosugi, M. Nishitani, M. Kitagawa, and Y. Takai, "Effects of Wall Charge on Firing Voltage and Statistical Delay Time in Alternating Current Plasma Display Panels", *Japanese Journal of Applied Physics* Vol. 49, 040212-1/3 (2010) (査読有) .
- (8) T. Nagatomi, S. Tanuma, and K. Goto,

- "Absolutely Determined Inelastic Mean Free Paths for 300-3000 eV Electrons in 10 Elemental Solids", Surface and Interface Analysis Vol. 42, 1537-1540 (2010) (査読有) .
- (9) T. Nagatomi, K. Goto, R. Shimizu, and Members of JSPS141-WG-SEY, "Working Group Report of Database Construction of Secondary Electron Yield (JSPS141-WG-SEY) [I] Precise Measurement by Charge Amplification Method", Surface and Interface Analysis Vol. 42, 1541-1543 (2010) (査読有) .
- (10) Y. Nakanishi, T. Nagatomi, and Y. Takai, "Change in Work Function during Phase Transition of Sc-O/W(100) System at High Temperatures", Applied Surface Science Vol. 256, 1082-1087 (2009) (査読有) .
- (11) T. Nagatomi and K. Goto, "Inelastic Mean Free Path, Surface Excitation Parameter, and Differential Surface Excitation Parameter in Au for 300 to 3000 eV Electrons", Applied Surface Science Vol. 256, 1200-1204 (2009) (査読有) .
- (12) T. Nagatomi, T. Kuwayama, K. Yoshino, Y. Takai, Y. Morita, M. Nishitani, and M. Kitagawa, "In Situ Measurement of Surface Potential Developed on MgO Thin Film Surface under Ion Irradiation using Ion Scattering Spectroscopy", Journal of Applied Physics Vol. 106, 104912-1/11 (2009) (査読有) .
- (13) T. Nagatomi, T. Bungo, and Y. Takai, "Influences of Measurement Conditions on Etching Rate of GaAs/AlAs Superlattice in Auger Electron Spectroscopy Sputter Depth Profiling", Journal of Surface Analysis Vol. 15, 329-332 (2009) (査読有) .
- (14) J. D. Lee, T. Nagatomi, G. Mizutani, and K. Endo, "Photoemission Electron Spectroscopy I: History and Overview", Journal of Surface Analysis Vol. 16, 42-63 (2009). (査読有) .
- (15) J. D. Lee, T. Nagatomi, G. Mizutani, and K. Endo, "Photoemission Electron Spectroscopy II: Satellites by Local Excitation", Journal of Surface Analysis Vol. 16, 127-152 (2009) (査読有) .
- (16) T. Nagatomi, T. Bungo, and Y. Takai, "Incident Angle and Energy Dependences of Low-Energy Ar⁺ Ion Sputtering of GaAs/AlAs Multilayered System", Surface and Interface Analysis Vol. 41, 581-589 (2009). (査読有) .
- [学会発表] (計 16 件)
- (1) K. Yoshino, Y. Morita, M. Nishitani, T. Nagatomi, Y. Takai and Y. Yamauchi, "Effects of Heating in Air on Metastable De-Excitation Spectroscopy Spectra of MgO and CaO Films", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010, Gyeongju, Korea).
- (2) T. Ogiwara, T. Nagatomi, K. J. Kim and S. Tanuma, "High Depth Resolution Auger Depth Profiling using a 85° -High-Angle Inclined Holder", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010, Gyeongju, Korea).
- (3) T. Miyagawa, M. Inoue, T. Iyasu, Y. Hashimoto, K. Goto, R. Shimizu and T. Nagatomi, "Measurement of Secondary Electron Yield by Charge Amplification Method", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010, Gyeongju, Korea).
- (4) S. Heo, J.G. Chung, H. I. Lee, J. C. Lee, G. S. Park, D. Tahir, S.K. Oh, H. J. Kang, T. Nagatomi and Y. Takai, "Band Alignment and Defect States in Amorphous Si-N Compounds on Si Substrates", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010, Gyeongju, Korea).
- (5) S. Heo, J.G. Chung, H. I. Lee, J. C. Lee, G. S. Park, D. Tahir, S.K. Oh, H. J. Kang, T. Nagatomi and Y. Takai, "Surface Defect States of MgO Films", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010, Gyeongju, Korea).
- (6) Y. Murasawa, J. Azargal, K. Yoshino, T. Nagatomi, Y. Takai, Y. Morita and M. Nishitani, "Change in Ion-Induced Secondary Electron Yield of MgO Film Caused by Heating in Air", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010,

- Gyeongju, Korea).
- (7) H. Tanishiki, T. Ogiwara, T. Nagatomi, Y. Takai, K. J. Kim and S. Tanuma, "High-Sensitive Depth Profiling Analyses of Delta-Doped Layers Specimens with Glancing Angle Irradiation and Detection Method", 5th International Symposium on Practical Surface Analysis and 7th Korea-Japan International Symposium on Surface Analysis (PSA-10), (October 3-7, 2010, Gyeongju, Korea).
 - (8) T. Nagatomi, "Determination of IMFP, SEP and DSEP by absolute REELS analysis", Hungarian-Japanese Joint Working Seminar on Studies of Fundamental Parameter Database and Atomic Processes for High Precision Quantitative Analysis using X-Ray Photoelectron Spectroscopy (in the frame of the bilateral MTA-JSPS scientific research cooperation project), (October 27, 2010, Debrecen, Hungary).
 - (9) T. Ogiwara, T. Nagatomi, and S. Tanuma, "High Depth Resolution Auger Depth Profiling Analysis Using Inclined Holder", Microscopy & Microanalysis 2010, (August 1-5, 2010, Portland, USA).
 - (10) T. Nagatomi, "Influence of Wall Charges on Electron Emission from MgO Layer in AC-PDP", Japan-Korea PDP Forum '09, (July 11, 2009, Kyoto, Japan).
 - (11) T. Nagatomi, S. Tanuma, and K. Goto, "Electron Inelastic Mean Free Path and Surface Excitation Parameter in 10 Elemental Solids Determined by Absolute REELS analysis over 300-3000 eV Range", 13th European Conference on Application of Surface and Interface Analysis (ECASIA'09), (October 18-23, 2009, Antalya, Turkey) .
 - (12) T. Nagatomi, T. Kuwayama, K. Yoshino, Y. Morita, M. Nishitani, M. Kitagawa, and Y. Takai, "In Situ Measurement of Surface Potential Induced on MgO Thin Film Surface under Ion Irradiation using Ion Scattering Spectroscopy", 5th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling (HRDP-5), (November 15-19, 2009, Kyoto, Japan) .
 - (13) T. Nagatomi, K. Goto, R. Shimizu, and Members of JSPS141-WG-SEY, "Working Group Report of Database Construction of Secondary Electron Yield (JSPS141-WG-SEY) [1] Precise Measurement by Charge Amplification

- Method", 7th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '09 (ALC'09), (Dec. 6-11, 2009, Hawaii, USA).
- (14) T. Nagatomi, S. Tanuma, and K. Goto, "Absolutely Determined Inelastic Mean Free Pathes for 300-3000 eV Electrons in 10 Elemental Solids", 7th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '09 (ALC'09), (Dec. 6-11, 2009, Hawaii, USA).
 - (15) T. Nagatomi, "How do we determine interface width and interface position of depth profile? -Definition in ISO documents and application to practical analysis-", The 1st Meeting of Korean-Chinese-Japanese Cooperative Program on "Materials Research with Emphasis on Activities Relating to VAMAS", (March 8-9, 2010, Deajeon, Korea).
 - (16) T. Nagatomi, "Mechanism of Secondary electron Emission", Korea-Japan PDP Forum 2010, (February 20-21, 2010, Jeju, Korea) .

[その他]
ホームページ等
<http://www-atom.mls.eng.osaka-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

永富 隆清 (NAGATOMI TAKAHARU)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：90314369