

令和 5 年 6 月 1 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14535

研究課題名（和文）空間電荷制限下で動作する薄膜フォトカソード電子銃における雑音低減の研究

研究課題名（英文）Study on a noise reduction in electron beams emitted from a thin-film photocathode in the space charge effect

研究代表者

石田 高史（Takafumi, Ishida）

名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

研究者番号：60766525

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：空間電荷効果を活用した電子線の雑音低減に向けて裏面照射型薄膜フォトカソード電子銃の開発および雑音低減された電子線の生成・測定を行った。裏面照射型薄膜フォトカソードの開発では、薄膜フォトカソードはパルスレーザー堆積法により六ホウ化ランタン薄膜を作製した。また、その結晶性と組成を走査透過電子顕微鏡で評価し、六ホウ化ランタン薄膜結晶を作製することがわかった。さらに、本薄膜フォトカソード電子銃をもいで空間電荷効果が現れる低加速電圧で光電子放出の実験を行い、空間電荷効果による放出電子数の減少を確認ができ目的とした電子線の生成に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で生成した電子線は電子顕微鏡に応用すれば低線量観察を強いられる電子線ダメージに弱い生体試料や高速現象のイメージングにおいて像質の向上が期待できるため、より電子線ダメージに弱い試料の構造解析や時間分解イメージングへの時間分解能向上に寄与できる。また、本研究で開発した六ホウ化ランタンをもちいた裏面照射型薄膜フォトカソード電子銃は取り扱いが容易であるため、さまざまな電子線応用装置の光励起電子源としての利用も期待される。

研究成果の概要（英文）：In order to reduce a noise of electron beams using the space charge effect, a back-side illumination type thin-film photocathode electron gun was developed. Lanthanum hexaboride as the thin-film photocathode was grown on a substrate by a pulse laser deposition method. Composition and structure of the thin film were confirmed by scanning transmission electron microscopy. The experiment of photo-electron emission from the thin film photocathode electron gun was carried out in low-acceleration voltage, which caused the space charge effect. Reduction of an electron beam current was observed by the space charge effect. We have generated electron beams with a reduced noise in the back-side illumination type thin-film photocathode electron gun.

研究分野：電子顕微鏡

キーワード：フォトカソード 薄膜 光励起電子源

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

電子顕微鏡において電子線ダメージに弱い生体試料の観察や高速現象の観察においては極低線量下での像撮影を強いられる。低線量での観察ではその像質はカメラに電子がランダムに到着することに由来する量子雑音に支配されることになる。この雑音は電子が電子源から放出される過程に依存し、その分布はポアソン分布となることがよく知られている。ポアソン分布に従う電子線はある時間ごとに区切ると電子数はその平均値からばらついており、これが電子顕微鏡像の像質を制限することとなる。一般にこの制限を超えたイメージングは困難である。

この制限を超えるためには電子源から放出された電子の時間分布の変換が必要となる。通常のポアソン分布に従う電子線においては、前述したようにある時間ごとに区切って電子量を数えると電子数がばらつき、それが電子線の変動となる。一方で、放出電子を制御し整列化させることができるのであれば電子線の変動を低減させることができる。

電子の整列化は空間電荷効果により実現可能である。空間電荷効果はある空間で電流密度が非常に高い場合に起きる。電極間での空間電荷効果による量子雑音の低減は真空管において古くから研究がなされている[1]。またその効果は真空電子工学でよく知られており、その原理は以下の通りである。電子銃から放出される電子がある瞬間に増加すると、これにより電極間の電界が弱まり放出電子数が減少する。また放出電子数がある瞬間に減少すれば電子銃から放出される電子が増加傾向となる。このようなフィードバック機構が空間電荷効果により働き、放出電子が整列化される。しかしながら雑音が低減された電子線はビームの発散や電流量の低下を引き起こすため応用面ではデメリットが多いとされており、これまで積極的な活用はされてこなかった。

2. 研究の目的

上記の背景から、負の影響をもつ空間電荷効果は、雑音の低減という形で低線量でのダメージレスやパルス電子線イメージングに活用できることを示唆している。近年注目を浴びる裏面から励起光を照射する薄膜フォトカソード電子銃はその構造上、空間電荷効果の影響を受けやすい。つまり、パルス駆動も可能な裏面照射型薄膜フォトカソード電子銃において空間電荷効果を強く働かせる状態を実現することで、電子の整列化により低雑音の電子線を得ることができる。そこで本研究では、空間電荷効果下で動作する透過光吸収型薄膜フォトカソード電子銃の作製および本電子銃もちいて雑音が低減された電子線の生成を目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、裏面照射型薄膜フォトカソード電子銃を開発し、超高真空装置内で低加速電圧下において光電子放出を行うことで雑音が低減された電子線の生成を行う。以下の方法により研究を進めた。

(1) 薄膜フォトカソードの作製

フォトカソードには六ホウ化ランタン(LaB₆)薄膜を透明基板上に成膜した。LaB₆は半導体フォトカソードと異なり特別な表面処理を必要とせず、薄膜表面にできる自然酸化膜を取り除くのみで光電子放出が可能である。ここでLaB₆の成膜には高融点材料が蒸着可能なパルスレーザー堆積法を用い、最適な成膜条件の検討を行った。透過電子顕微鏡をもちいて結晶品質の評価も行い、成膜条件を検討することで結晶性の向上を目指した。

(2) 超高真空チャンバーの改良および電極形状の設計・作製

フォトカソード電子銃を搭載するための超高真空チャンバーは既存の電子銃チャンバーから流用した。ここで電子銃の電極は本実験専用設計し、作製をした。ここで電極設計の際は電子光学シミュレータを利用して空間電荷効果がよく現れる低加速(1kV以下)で動作可能なアノードとカソードの形状を見積もった。

(3) 光電子放出とその電流測定

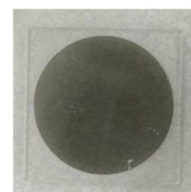
光電子放出実験に向け光電子励起のためのレーザー光学系についても専用に構築した。六ホウ化ランタン薄膜の仕事関数を超える青色レーザーで電子線を励起した。上記の実験系を構築した後に薄膜フォトカソードによる光電子の放出量を評価し、光電変換効率を見積もった。さらに、光電子放出量の加速電圧依存性を評価し、空間電荷効果の影響を確認した。また超高真空チャンバー内にSi電子線検出器を取り付け、光電子放出の際のSi電子線検出器の出力を評価した。

4. 研究成果

(1) 薄膜フォトカソードの成膜とその評価

本研究ではフォトカソードの裏面から可視光の励起光を照射するため、薄膜フォトカソードの基板は励起波長での透過率が高く、また薄膜との格子の整合性が高い必要がある。先行研究[2]

を参考に LaB₆ 薄膜と格子定数が近く励起波長での透過率が高い MgO 単結晶を基板として用いた。PLD 法を用いた成膜にあたり、超高真空中で MgO 単結晶基板のプリヒートを行い、蒸着面のクリーニングを行った。その後、YAG レーザーの 4 倍波を LaB₆ ターゲットに集光して照射し、MgO 単結晶基板上に LaB₆ を成膜した。ここでは成膜中の基板温度の最適化も行った。室温で蒸着した場合薄膜の表面が白化し透過率が低下することがわかった。これは La が析出し、大気に取り出した際に析出物が酸化膜を形成したことを示唆している。そこで本装置においては 750°C で基板を加熱して蒸着し、成膜を行った。図 1 に成膜後の薄膜を撮影した写真を示す。成膜した薄膜は上面から観察すると図 1 のように薄い黒色をした薄膜となっていることがわかる。また、薄膜を傾けて観察をすると、バルクの LaB₆ 特有の赤紫色が観察された。



5 mm

図 1 MgO 基板上の LaB₆ 薄膜の写真

図 2 に作製した LaB₆ 薄膜の断面を走査透過電子顕微鏡(STEM, JEOL ARM-200F Cold)で観察した環状暗視野(ADF)像を示す。また、図 2 の左上に ADF 像の FFT パターンを示した。本断面試料は集束イオンビーム装置(FIB, Hitachi High-Tech FB-2100)により微小片が取り出され、厚さが 100 nm 程度になるまで薄片化した。図 2 から LaB₆ 薄膜全体に格子像が観察され、結晶性の試料であることが確認された。また FFT パターンから LaB₆ 薄膜が MgO 基板に沿った成長したことも確認できる。一方で、膜全体が単結晶であるとは言えず、本薄膜は高い配向性をもつ多結晶として成膜されていることがわかった。これに加えて STEM-EDX マッピングも行い、薄膜から B と La のピークが観察されるとともに定量解析の結果、膜中の B と La の比がおおよそ 6 : 1 となることがわかった。以上により PLD 法を用いて MgO 基板上に結晶性の LaB₆ を成膜できることがわかった。

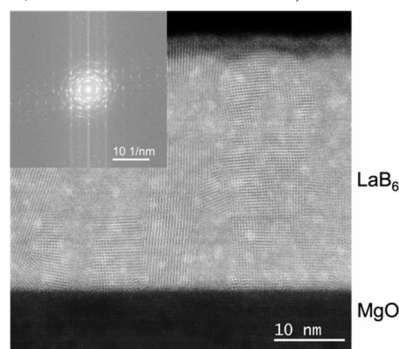


図 2 LaB₆ 薄膜の ADF-STEM 像、挿入図は像の FFT パターン

(2) 光電子放出実験

作製した LaB₆ を用いた薄膜フォトカソードを光電子放出させるために電極付きの超高真空チャンパーに搭載した。薄膜フォトカソードは真空チャンパー内のカソード電極に取り付けた。また本チャンパーはカソード側にビューポートが取り付けられておりフォトカソードの裏面から励起を導入できる。カソードには LaB₆ 表面の自然酸化膜を取り除くためのヒータが取り付けられており、本実験では 1300 以上の加熱を複数回行うことで光電子放出が可能となることを確認した。また量子効率を測定し、最大で $\sim 5 \times 10^{-6}$ の量子効率を得られた。

高圧電源とカソード間に電流計を取り付け、同じパワーである 406 nm のレーザー光を薄膜フォトカソードに入射させて光電子放出の時間変化とカソードへの印加電圧との関係を測定した結果を図 3 に示す。どちらの印加電圧でもレーザー光の照射とともに光電子が放出された。カソードに -500 V の電圧を印加した場合、放出電流量は時間とともに大きく変化しなかった。一方で印加電圧 -200 V の場合にはピーク電流量は -500 V と同様であったが、時間とともに減衰する様子が測定された。減衰のスピードは測定時の信号対雑音比を向上させるためのフィルタリングの影響を受けているためゆっくりと変化しているが、本結果は空間電荷効果により放出電子数の抑制が起こったことを示している。これは本薄膜フォトカソード電子銃より雑音が低減された電子線の生成がなされたことを示唆している。

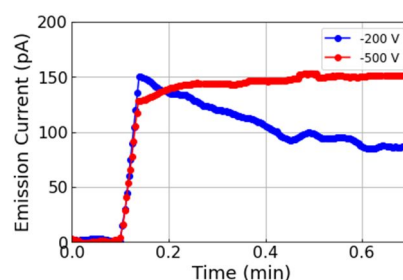


図 3 LaB₆ 薄膜での光電子放出結果

また、空間電荷効果による電子線の雑音低減の直接測定に向け電子線を効率よく検出可能な Si 電子線検出器をもちいて本薄膜フォトカソード電子銃から放出される光電子の検出を試みた。その結果、Si 電子線検出器からの出力が観察された。一方で本チャンパーでは Si 電子線検出器をレーザー光の光軸上に搭載する必要があるため光と電子線が同時に検出され Si 電子線検出器による直接観察は難しいこともわかった。本装置で電子線の雑音低減を直接測定するためには軸外測定が必要であり、電子線偏向器の導入することでその測定が可能である。

放出電子線のアノード電極までの走行時間を考慮するとナノ秒のパルス電子線においても本効果が得られるため、高速現象の観察の際の信号対雑音比の低下を抑制可能である。今後、このような電子顕微鏡法に本成果を活用できれば信号対雑音比により制限される空間分解能や時間分解能の向上が期待される。

< 引用文献 >

[1] G. L. Pearson, Physics, 6, 6-9, 1935

[2] V. Craciun, D. Cristea, G Socol et. al., J. Vac. Sci Technol. A, 35, 051509, 2016

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 石田高史、桑原真人、齋藤晃
2. 発表標題 LaB6薄膜をもちいた透過光型フォトカソード電子銃の開発
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------