

令和元年6月24日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04631

研究課題名(和文)300・10MGyの耐熱耐放射線性能を持つ電子・撮像デバイス用微小電子源の開発

研究課題名(英文) Development of miniaturized electron sources for electron and imaging device with radiation tolerance of 10 MGy and temperature of 300 degrees in Celsius

研究代表者

後藤 康仁 (GOTOH, Yasuhito)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00225666

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：高温や放射線に耐える電子デバイスや撮像デバイスを開発する目的で、二酸化シリコン、窒化シリコン、酸化アルミニウムなど各種絶縁物の薄膜を形成し、その絶縁性を評価した。また、候補となる絶縁物薄膜を組み合わせた絶縁層を有するフィールドエミッタアレイの作製技術を確認し、十分な電子放出を確認した。フィールドエミッタアレイを制動放射X線やコバルト60ガンマ線照射下で電子放出特性を評価した。その結果、1 kGy/hという高い線量率において、動作中の累積線量が2 kGyを超えても動作に問題ないことを確認した。撮像デバイスにおける実駆動時間を考慮すると、高い耐放射線性を有すると考えることができる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

微細加工を用いて作る真空ナノエレクトロニクスデバイスの持つ特徴として、半導体にはない高い耐放射線性などが期待されていたが、実際に耐放射線性を調べた例はほとんどない。本研究では、真空ナノエレクトロニクスデバイスの一つであるフィールドエミッタアレイが高い耐放射線性をもち可能性を有することを示した。今回の結果から、福島第一原子力発電所の廃炉作業などにおいて使用することのできる撮像デバイスや電子デバイスの実現に大きく近づいた。

研究成果の概要(英文)：In order to develop the electron devices and imaging devices that have tolerance against high temperature and radiation, several kinds of insulating thin films such as silicon dioxide, silicon nitride, and aluminum oxide were prepared and their insulating properties have been examined. The fabrication process of the field emitter arrays with the insulating layer consisted of two different insulating materials was established. Sufficient amount of electron current was obtained with the fabricated device. The electron emission properties of the field emitter arrays were tested under the dose rate of irradiation of 1 kGy/h, and it was found that the field emitter array worked at least to the accumulated dose of 2 kGy. Considering that the actual activated time for one emitter is short, it was proven that the field emitter array has sufficient radiation tolerance.

研究分野：真空電子工学

キーワード：フィールドエミッタアレイ 絶縁膜 絶縁耐圧 制動放射X線 ガンマ線 耐放射線性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所の廃炉作業においては、高い線量率の放射線環境の中で動作する撮像デバイスや電子デバイスが必要とされている。撮像素子の主流は CMOS など半導体を利用したものであるが、耐放射線性が十分ではないため、耐放射線撮像素子としては、依然として真空管方式のものが利用されているのが実情である。しかしながら、廃炉作業に利用するロボットなどに搭載するためには真空管式のもの大型で消費電力も高いため、小型の真空管式撮像素子の開発が望まれている。この様な背景の下、研究代表者らは、従来の撮像素子の電子銃部分を2次元に配列した微小電子源アレイに置き換え、材料も検討することにより、十分な耐放射線性能を持つ撮像素子を提案している。研究開始当初は、光電変換膜や電子源アレイが 1 MGy を超えるガンマ線照射を行っても特性の劣化がないことを示した。長い期間におよぶ廃炉作業や、事故時にあっては、一時的に高温、かつ極めて高い線量率の放射線環境に曝される可能性があり、高温下でより高い線量の放射線照射に耐えるデバイスの開発が望まれている。

2. 研究の目的

福島第一原子力発電所の格納容器内の観察をはじめ、事故時の高温・高線量率下であっても動作するカメラや電子デバイスを、微細加工を用いて作製する電界放出型の微小電子源アレイ(フィールドエミッタアレイ、FEA)を用いて実現することを最終的な目標としている。この研究課題においては、その第一段階として真空電子デバイスの基本構成要素である FEA に、耐高温、耐放射線特性を付与することを目的とする。FEA においてはこれらの特性は電極間絶縁膜の特性で定まる。絶縁性の良い、かつ耐放射線性のある絶縁層薄膜を開発し、その薄膜を用いた FEA 作製プロセスを確立することを目的とする。また、放射線照射下における FEA の特性を評価し、耐放射線性を示すことも目的とする。

3. 研究の方法

(1) 絶縁膜の作製と FEA 作製技術の開発

絶縁膜の評価として、実際に電子源の作製に使用する装置を用いて絶縁膜を成膜し、その絶縁耐圧を評価した。プラズマ CVD による SiO_2 膜と、反応性スパッタによる SiN 膜と、原子層堆積装置 (Atomic layer deposition: ALD) による Al_2O_3 膜の絶縁耐圧を評価した。まず、シリコンウエハを RCA 洗浄し清浄な状態にたもってから、絶縁膜を形成した。 SiO_2 膜の成膜は、基板温度 350 で、常温で液体の TEOS (テトラエトキシオルトシリケート) を 80 にて気化したガス 7 sccm、 O_2 を 300 sccm 流し圧力を 106.4 Pa に制御した状態で 200 W の RF プラズマでガスを分解し SiO_2 膜を成膜した。 SiN 膜の成膜の際にはインライン型のスパッタ装置を用い、Ar と窒素をそれぞれ 10 sccm、20 sccm 流しながら真空排気を行い DC 電源により 300 W 投入しプラズマを生成し成膜した。インラインスパッタにおいてはプラズマ中をウエハが移動(搬送)しながら成膜されるので、搬送速度で成膜される膜厚が決定される。本研究では 15 mm/min の搬送速度で約 96 nm の SiN 膜が成膜できた。膜厚は光干渉式膜厚計(NanoSpec)にて測定した。一方、 Al_2O_3 の成膜には原料ガスとしてトリメチルアルミニウムを用い、プラズマを援用しながら基板温度 200 で約 100 nm 成膜した(膜厚は ALD 装置に付属する分光エリブソにて測定)。各絶縁膜を成膜した後、電極を形成し、電極/絶縁膜/基板の積層構造に電圧を印加して、耐圧を評価した。

また、これらの絶縁膜を使って FEA を作製するために、プロセスで必要となるバッファードフッ酸でのエッチングレートの評価し、実際に FEA を試作した。FEA の作製方法を図 1 に示す。(a) 基板の上にリフトオフレジスト(マイクロケム社製 LOR-7A。以下 LOR)とフォトレジスト(住友化学社製 PFI-38A7)を塗布し、0.6 μm の穴パターン露光し現像する。LOR は現像液で等方的にエッチングされるので、図 1(a)に示したようにオーバーハング構造が形成できる。(b)その後、電子ビーム蒸着によりエミッタ材料(Ni)を 2 μm 蒸着した。この時オーバーハング構造の穴の中には円錐形状のエミッタが形成できる。(c)そして、n メチル 2 ピロリジノン(2-Methyl-2-pyrrolidone)を主成分とする有機溶剤にて 2 層のレジストとその上の Ni 膜を剥離する。基板上には Ni のエミッタのみが残る。

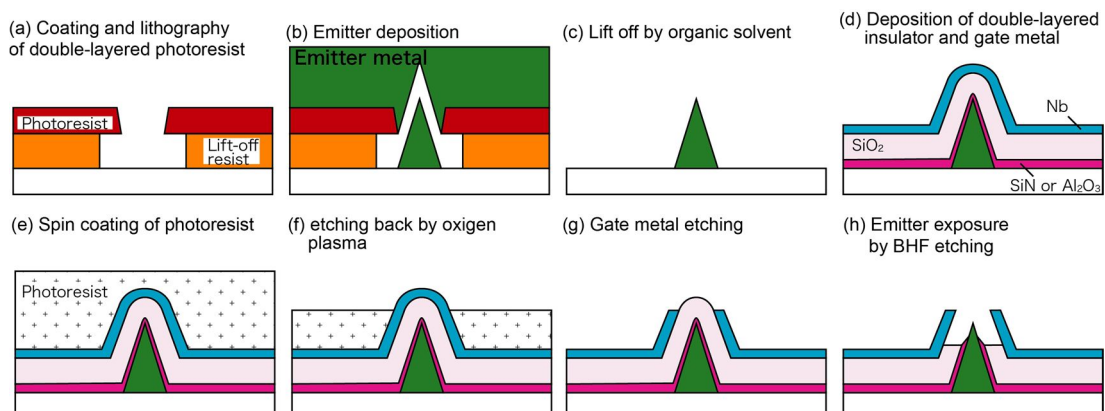


図 1 Volcano 構造フィールドエミッタアレイの作製方法

(d)そして、エミッタの上に上記で説明した SiN 膜か Al₂O₃ 膜を約 30 nm 成膜した後、SiO₂ 膜を 300 nm、ゲート電極となる Nb 膜を 200 nm 成膜する。(e)その後膜厚約 3 μm のフォトリソスト（信越化学性 SIPR-9740-3.0）を回転塗布し、(f)酸素プラズマでエミッタの頂点と同じ高さになるようにエッチングする（エッチバック）。(g)フォトリソストから露出した部分を、SF₆ ガスを使ったリアクティブイオンエッチング（RIE）によりエッチングしゲート電極の開口を造る。(h)緩衝フッ酸（BHF）でエッチングする事でエミッタ先端を露出する。

(2) 放射線環境下におけるフィールドエミッタアレイの特性評価

放射線環境下における FEA の電子放出特性は、電子線加速器を用いて生成した高エネルギー X 線照射下およびコバルト 60 ガンマ線源によるガンマ線照射下において評価した。いずれの場合も、FEA にステンレス鋼製のアノードを取り付けて三極管構造として特性を評価した。前者は、電子線加速器に FEA の特性測定用の真空装置を接続して 1 MeV に加速した電子線をタングステン板に入射させ、そこから放出される制動放射 X 線を FEA 測定系に照射できるようにした装置を利用した。真空装置の到達圧力は 2×10^{-6} Pa 程度であるが、加速器と接続した場合は、加速器側からの気体の流入があるため、FEA 付近の圧力はおおよそ 1×10^{-5} Pa 程度となる。予備的な測定において、試料上に電位を与えない孤立電極が存在すると、X 線照射下においてはエミッタから放出された電子が徐々にアノードに到達しなくなる現象が生じることが明らかとなっている。孤立電極が放射線照射により帯電するためと考えられている。本研究課題では、撮像素子のための FEA 開発も念頭においているため、評価においては画素ごとに FEA を駆動できるマトリクス型の FEA も評価の対象としている。本研究では新たに 14 行 × 12 列のマトリクス駆動 FEA の電極の電位を固定できるようなスイッチボックスを作製した。また、14 × 12 画素を持つ FEA を搭載することのできる支持台も作製した。また、コバルト 60 線源を用いたガンマ線照射下における電子放出特性の評価にあっては、ガンマ線照射中に真空を維持できる真空容器が必要となる。本研究では、非蒸発ゲッタ（NEG）ポンプを搭載した小型真空容器を試作した。予め別の真空装置に接続して真空排気を行い、NEG ポンプに切り替えて 10^{-6} Pa 以下の圧力をほぼ 90 日間維持することができた。

制動放射 X 線照射は京都大学大学院工学研究科附属量子理工学教育研究センターのバンデグラーフ型電子線加速器を使用した（学内共同利用）。1.2 kGy/h 程度までの線量率の高エネルギー X 線照射下における FEA の電子放出特性、すなわち電流電圧特性や放出電流の時間変化を測定した。ガンマ線照射は京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 ガンマ線照射装置を使用した（採択番号 28050、29014、30017）。この場合もおおよそ 1 kGy/h 程度の線量率のガンマ線照射環境下において、FEA の電流電圧特性や放出電流の時間変化を測定した。

4. 研究成果

(1) 絶縁膜の作製とフィールドエミッタアレイ作製技術の開発

図 2 に絶縁膜の耐圧評価結果（I-V 特性）を示す。TEOS-SiO₂ は 72 V で絶縁破壊、ALS-Al₂O₃ は 67 V で絶縁破壊を起こしたが、いずれも同程度の特性と言える。一方、スパッタに依り成膜した SiN 膜はリーク電流が非常に多く、この膜単体では、絶縁膜としては使えないことがわかった。

また、森田化学社製 110-BHF によるエッチングレートの評価した結果は、Al₂O₃ 膜は約 100 nm/min、TEOS-SiO₂ 膜は 200 nm/min 程度であった。参考までにシリコン熱酸化膜のエッチングレートは 50 nm/min である。

次に FEA の試作結果について示す。図 3 は Al₂O₃ と SiO₂ の 2 層の絶縁膜を用いた FEA の断面形状である。Al₂O₃ 膜は SiO₂ よりもエッチングレートが遅いので、エミッタの側壁を Al₂O₃ が覆っているような格好になっている。この特性は、上手く使うと、トリプルジャンクション（真空・絶縁膜・金属の 3 つの材料が一点で接する部分で、非常に強電界がかかり絶縁破壊の原因になる部

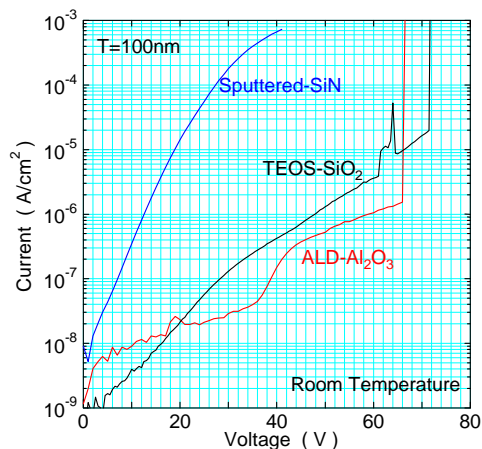


図 2 各種絶縁膜の耐圧評価結果（室温）

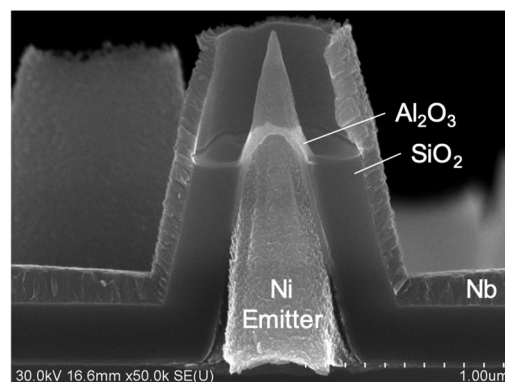


図 3 SiO₂/Al₂O₃ の 2 層の絶縁膜を有する Ni FEA の断面 SEM 像

分)の位置をエミッタ先端付近に形成し、尚且つ、絶縁膜の沿面を長くする事でできる可能性があり、FEAの絶縁破壊を抑えることができる可能性がある。このFEAの電子放出特性を超高真空中で測定した結果、100tipのアレイから、100Vで最大で200 μ Aの電子放出を確認した。

(2) 放射線環境下におけるフィールドエミッタアレイの特性評価

制動放射X線照射下において、総ての電極に電位を与えた場合には、予備的な実験の結果とは異なり、X線照射に伴うアノード電流の消失は観測されなかった。このことから、FEAの各電極に電位を与えれば、1kGy/h程度の放射線環境下における動作には問題がないことが明らかとなった。異なる線量率の元で30分間制動放射X線を照射しながら、SiO₂を絶縁膜に持つ1,000tip FEAの電流電圧特性を調べたところ、1.5 μ A程度の放出電流では、エミッタ電流、アノード電流にはほとんど変化が見られなかった。ゲート電流(エミッタ-ゲート間の電流)はX線の線量率が増えるに従い図4に示すように直線的に増加した。1kGy/hの線量率に対して、500pAである。また、照射前には5pAであったゲート電流が0.4kGy/hおよび0.9kGy/hの照射30分程度の後、50pA程度に増加した。1.2kGy/hの照射60分後はアノード電流が1.9 μ A程度上昇した。Fowler-Nordheim(FN)プロットの切片傾き解析を行ったところ、1.2kGy/hの60分照射後は、切片傾き(SK)プロットは同じ傾きを維持してやや右にシフトしており、動作しているエミッタ数の増加が推測された。また、X線照射に伴うエミッタ先端の状態変化を調べるために、1tipのFEA(ダブルゲート)の電子放出特性も測定した。その結果、X線が照射されない場合と比較して、ステップ雑音の頻度が増していることが明らかとなった。エミッタ表面における原子変位の生じる頻度が高まっていることが推測される。

ガンマ線照射下における電子放出特性の測定においては、FEAの事前のエージングを念入りに行い、電流電圧特性の細かい変化についても追えるようにした。測定方法は以下のとおりである。ガンマ線照射を行わない状態でまず電流電圧特性を5回測定した。その後、アノードに200V、エミッタに-30V、ゲートに30Vを印加して1 μ A程度の電子放出を行わせ、1時間これを継続した。その後再度電流電圧特性を5回測定した(run1)。この後1.3kGy/h程度の線量率でガンマ線照射を行った状態で電流電圧特性を5回測定し、その後上記と同様の固定条件で電子放出させた(run2)。1時間経過後、ガンマ線照射下状態で電流電圧特性を5回測定した(run3, 4)。上記の手順を改めてもう1度行った後、最後にガンマ線照射を行わない状態で電流電圧特性を5回測定し、1時間の連続動作を行った後、電流電圧特性の測定を5回行った(run5)。5時間の連続測定の結果を図5に示す。アノード電流は当初0.8 μ A程度であったが、5時間後には0.55 μ A程度まで徐々に減少する傾向が見られた。ガンマ線非照射と照射の隣接する電流電圧特性(例えばrun1の最後とrun2の最初)のSKプロットはほぼ同じ直線上にあり、ガンマ線照射がエミッタに顕著な変化を及ぼしていないことが明らかとなった。詳しい解析を今後行う予定である。2時間のガンマ線照射で累積線量2.6kGyを照射してもFEAの動作には大きな問題がなかった。撮像素子では、一つのFEAが動作する時間は、画面全体を構成する時間に対して短い。画素数がNの場合、動作する時間は実時間の1/Nとなる。画素数が多ければ、かなり高い累積線量まで動作する可能性がある。

このほか、高い累積線量を与えた際の絶縁膜の挙動を解析するために、本研究で作製した絶縁膜への高エネルギーイオン照射を実施した。特性は今後評価する。また、高温における絶縁膜の特性評価のための準備を行った。

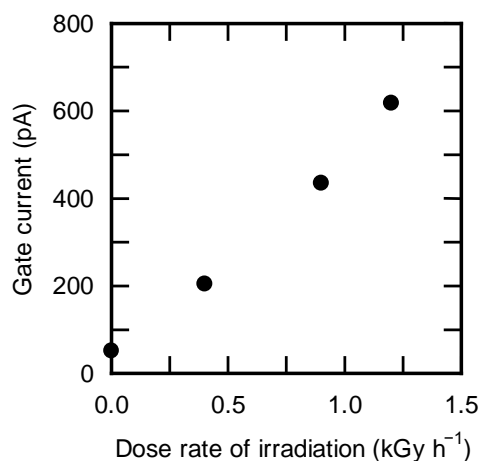


図4 制動放射X線照射下で動作するFEAに流れるゲート電流 ($V_{GE}=55$ V, $I_A=1.5$ μ A)

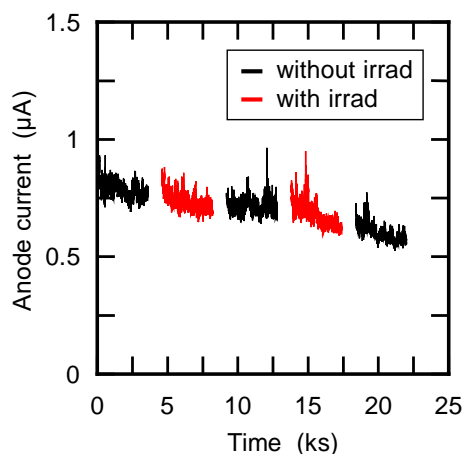


図5 ガンマ線非照射時、照射時の電流電圧特性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

1. 後藤康仁、辻 博司、長尾昌善、秋吉優史、高木郁二、「X線照射下におけるフィールドエミッタアレイの動作特性評価装置」J. Vac. Soc. Jpn. 60, pp. 328-333 (2017).

〔学会発表〕(計16件)

1. Y. Gotoh, T. Morito, M. Nagao, T. Masuzawa, Y. Neo, H. Mimura, T. Okamoto, T. Igari, T. Fukui, N. Sato, M. Akiyoshi, and I. Takagi, "Radiation tolerant vacuum image sensor for robots working on removal of fuel debris", Proceedings of the International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research, May 23-26, 2019, Naraha, FDR2019-1099.
2. M. Nagao, K. Murakami, S. Khumpuang, S. Hara, Y. Gotoh, Y. Neo, and H. Mimura, "Fabrication of volcano structured Spindt-type field emitter arrays using Minimal Fab system", The 31st International Vacuum Nanoelectronics Conference, July 9-13, 2018, Kyoto, pp. 206-207.
3. T. Morito, Y. Handa, Y. Gotoh, M. Nagao, M. Akiyoshi, I. Takagi, and T. Okamoto, "Operation of field emitter arrays under high dose rate gamma-ray irradiation", The 31st International Vacuum Nanoelectronics Conference, July 9-13, 2018, Kyoto, pp. 96-97.
4. 森藤瑛之、後藤康仁、長尾昌善、佐藤信浩、秋吉優史、高木郁二、岡本 保、「小型真空容器を用いたガンマ線照射下におけるフィールドエミッタアレイの電子放出測定」第65回応用物理学会春季学術講演会、東京、2018/3/17-20、20a-B303-4.
5. 後藤康仁、森藤瑛之、長尾昌善、増澤智昭、根尾陽一郎、三村秀典、岡本保、猪狩朋也、秋吉優史、佐藤信浩、高木郁二、「フィールドエミッタアレイと光電変換膜を用いた撮像素子の耐放射線性能」第65回応用物理学会春季学術講演会、東京、2018/3/17-20、19p-C102-9.
6. 森藤瑛之、長尾昌善、秋吉優史、高木郁二、後藤康仁、「高線量率のX線照射下におけるフィールドエミッタアレイの動作」電子情報通信学会技術研究報告 Vol. 117, No. 267, pp. 43-46 (電子デバイス研究会、仙台、2017/10/26-27、ED2017-46).
7. 森藤瑛之、辻 博司、後藤康仁、長尾昌善、秋吉優史、高木郁二、「高線量率のX線照射下におけるフィールドエミッタアレイの連続動作」第78回応用物理学会秋季学術講演会、福岡、2017/9/5-8、5p-S41-20.
8. 森藤瑛之、辻 博司、長尾昌善、秋吉優史、高木郁二、後藤康仁、「高線量率のX線照射下におけるフィールドエミッタアレイの電子放出特性」第58回真空に関する連合講演会(2017年真空・表面科学合同講演会) 横浜、2017/8/17-19、1Dp13、p.29.
9. Y. Gotoh, T. Morito, H. Tsuji, M. Nagao, M. Akiyoshi, and I. Takagi, "Robustness of field emitter arrays against high-energy x-ray irradiation at high dose rate", The 30th International Vacuum Nanoelectronics Conference, Regensburg, Germany, July 10-14, 2017, p.104-105.
10. M. Nagao, K. Murakami, Y. Gotoh, Y. Neo, H. Mimura, "Process technology for volcano-structured double-gate Spindt-type field emitter arrays", The 30th International Vacuum Nanoelectronics Conference, Regensburg, Germany, July 10-14, 2017, p.122-123.
11. 長尾昌善、村上勝久、クンプアンソマワン、原史朗、「ボルケーノ構造ダブルゲートスピント型フィールドエミッタアレイの電子放出特性とミニマルファブによる試作例」第14回真空ナノエレクトロニクスシンポジウム、浜松、2017/3/2-3/3、pp.155-164.
12. 長尾昌善、村上勝久、後藤康仁、三村秀典、根尾陽一郎、「耐放射線イメージセンサ用集束電極一体型フィールドエミッタアレイの開発」第57回真空に関する連合講演会(2016年真空・表面科学合同講演会)、名古屋、2016/11/29-12/1、31a03.
13. 後藤康仁、辻 博司、長尾昌善、秋吉優史、高木郁二、「エックス線照射下におけるフィールドエミッタアレイの動作特性の評価装置」第57回真空に関する連合講演会(2016年真空・表面科学合同講演会) 名古屋、2016/11/29-12/1、31a02.
14. 長尾昌善、村上勝久、辰巳憲之、クンプアンソマワン、原史朗、後藤康仁、「ミニマルファブを活用した微小電子源の作製」電子情報通信学会技術研究報告 Vol. 116, No.268 (2016) pp.31-36 (電子デバイス研究会、津、2016/10/25-26、ED2016-50).
15. 後藤康仁、辻 博司、長尾昌善、秋吉優史、高木郁二、「エックス線照射下におけるフィールドエミッタアレイの動作特性とその解析」電子情報通信学会技術研究報告 Vol. 116, No.268 (2016) pp.5-8 (電子デバイス研究会、津、2016/10/25-26、ED2016-44).
16. 長尾昌善、辰巳憲之、村上勝久、クンプアンソマワン、原史朗、後藤康仁、「ミニマルファブを利用したスピント型フィールドエミッタアレイの試作」第77回応用物理学会秋期学術講演会、新潟、2016/9/13-9/16、15p-B5-11.

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：辻 博司

ローマ字氏名：(TSUJI, Hiroshi)

所属研究機関名：京都大学

部局名：大学院工学研究科

職名：助教

研究者番号(8桁): 20127103

研究分担者氏名：長尾 昌善

ローマ字氏名：(NAGAO, Masayoshi)

所属研究機関名：産業技術総合研究所

部局名：ナノエレクトロニクス研究部門

職名：グループ長

研究者番号(8桁): 80357607

(2)研究協力者

研究協力者氏名：佐藤 信浩

ローマ字氏名：(SATO, Nobuhiro)

研究協力者氏名：秋吉 優史

ローマ字氏名：(AKIYOSHI, Masafumi)

研究協力者氏名：高木 郁二

ローマ字氏名：(TAKAGI, Ikuji)

研究協力者氏名：森藤 瑛之

ローマ字氏名：(MORITO, Teruyuki)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。