

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13685

研究課題名(和文) 針状試料を用いる必要のない新しい3次元アトムプローブの原理検証

研究課題名(英文) Proof-of-Concept of Novel Three Dimensional Atom Probe without Needle Structured Sample

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) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：針状構造の試料作製が必要なアトムプローブトモグラフィにおいて、平坦な試料を用いることのできる手法について検討した。試料を針状とする代わりに、平坦な試料に対向電極を近接させることで極めて短焦点距離の発散性静電レンズを形成することで、アトムプローブに匹敵する高い静電拡大投影の倍率が得られることが計算機実験を通して明らかとなった。またこれを実現するための電極を設計・製作し、予備的な実験を行った。

研究成果の概要(英文)：A novel method to use flat sample in atom probe tomography where the sample is requested to be formed as a needle structure was examined. It was found that high magnification of the electrostatic projection comparable to the atom probe can be obtained by placing a counter electrode above the flat sample with a very short spacing. The electrodes for this experiment was designed and fabricated, and preliminary experiments were performed.

研究分野：真空電子工学

キーワード：アトムプローブ 静電拡大投影 短焦点距離 平坦 倍率

1. 研究開始当初の背景

ナノ構造領域の元素の分布を原子レベルで調べることができるアトムプローブトモグラフィ(APT)においては、被測定試料を針状の構造に加工し、その形状により、試料先端部分において生じる強くて放射状の電界を利用することで、針状に存在する原子の位置を少し離れた位置敏感検出器上に拡大投影する原理を用いている。ここではこのような手法による、微小領域の情報を静電界を用いて比較的大きく拡大する手法を静電拡大投影と呼ぶ。また、針表面上の強電界によって電離したイオンはその質量電荷比によって検出器に到達するまでの時間が異なるため、飛行時間を調べれば、イオン種を同定することができる。近年の微細化した半導体デバイスや、ウイルスや細胞、タンパク質等の医療・薬学・生体材料の微細構造分析もその必要性を増してきている。半導体デバイス等無機材料は集束イオンビームなどを用いた加工法により針状の構造を形成することができるが、有機材料については、このような手法をとることができない。このような背景から、平坦な試料において、針状試料と同様なナノ構造領域の拡大を行うことのできる手法の確立が強く望まれていた。

一方、図1に示したような平坦な電極に開口を持つ電極を対向させて設けた単孔加速型静電レンズは発散性をもち、その際の焦点距離は電極間隔に反比例することが知られている。近軸軌道方程式から求めた焦点距離 f は、電極間隔を d として

$$f = -4d \quad (1)$$

で表すことができる。通常、このような電極系の電極間隔は短くてもサブ mm 程度であり、従って焦点距離も mm のオーダーである。

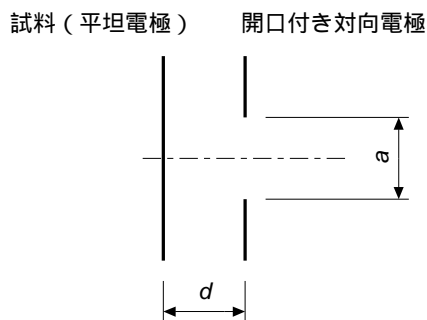


図1. 単孔加速型静電レンズの構造

距離 L だけ離れた検出器における位置の拡大率 M は

$$M = L / 4d \quad (2)$$

で表すことができるため、 L に対して d を著しく小さくすることができれば、平板電極上の位置情報も大きく拡大することができる。

2. 研究の目的

本研究では、APT において制限となっている針状試料作製の問題点を解決するために、上記で述べた単孔加速型静電レンズが利用

できないか見積もることを目的とした。具体的には、電極間隔 d を極めて短くしたときに得られる倍率や空間分解能がどの程度の値となるかを得られるかを評価することで、単孔静電発散レンズが APT に匹敵する倍率を得られるかどうかを見出すことを目的とした。

3. 研究の方法

原理検証として、計算機による荷電粒子軌道計算から倍率、空間分解能などを見積もることで、APT の倍率に匹敵する数十万倍の値が得られるか、またどの程度の空間分解能があるかを検証した。本研究では、単に数値計算を行うだけではなく、数値計算の結果から倍率や分解能を与える解析表現を求めることも目標とした。イオンを加速することを考えると、対向電極に強い負の電界が印加されることが予想される。対向電極表面から強電界による電子放出が発生するのを抑制するために、絶縁膜を形成した場合についても検討した。また、短い電極間隔を実現するために、 piezoelectric を用いた電極間隔制御装置を設計・試作して予備的な実験を行い、問題点の抽出を行った。

計算機を用いた数値計算の方法は以下のとおりである。今回の計算は、サイズの非常に小さい試料付近から比較的長い距離までの荷電粒子の運動を計算する必要がある。しかしながら、単孔静電発散レンズから放出されてしばらく荷電粒子が進行した領域では、空間には電磁界が存在しない。このため、レンズ付近の電位分布と荷電粒子の軌道計算を行えば、その後の軌道は等速直線運動と考えることができ、計算容量を低減させることができる。計算は市販のパーソナルコンピュータを用いて行った。

荷電粒子の軌道計算コードは、これまでに研究代表者が開発したものを利用した。円筒対称系の電極系が前提となるが、電極、真空に加えて、誘電体が存在する場合の電位計算を行うことができる。電位計算は差分法により行い、電界の計算には二次の項まで考慮した。荷電粒子軌道の計算(運動方程式の積分)にはルンゲ・クッタ法を用いた。単純な構造の電極であるので、径方向 $200 \times$ 軸方向 800 の格子点を用いたが、これより細かい格子を用いても結果が変わらないことを確認した。また、運動エネルギーの積分精度については、荷電粒子が領域端に到着したときの全エネルギーを確認することで行った。

単孔加速型静電レンズの倍率 M および空間分解能を、図1に示した電極構造パラメータの a や d を変化させた場合や電極間に異なる電圧を印加した場合などについて計算した。倍率 M は、試料上の中心軸から r_{in} 離れた場所から放出された軌道が、検出器に入射する点の軸からの距離 r_{out} を用いて

$$M = r_{out} / r_{in} \quad (3)$$

で評価した。空間分解能は、荷電粒子の初速の横方向成分を考慮し、軸と角度をなし

て放出される荷電粒子の検出器における位置 r_{out} を求め、

$$= 2 r_{out} / M \quad (4)$$

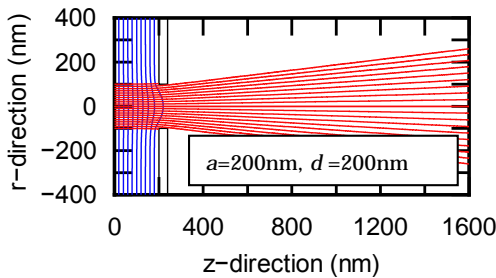
で評価した。 の値は 30° とした。

また、電極間隔が短いことにより生じる放電の可能性などを避けるために、対向電極に様々な厚みの絶縁膜を形成した際の、対向電極における電界の低減についても評価した。

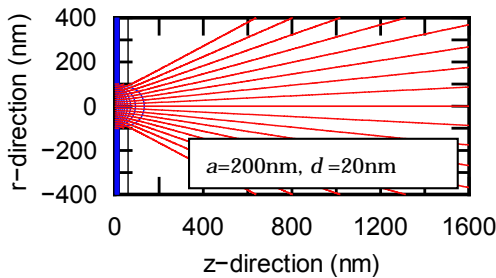
電極間隔および試料位置を制御する機構については、過去に電極間隔制御装置を試作した経験を踏まえて、 piezo素子を用いた 3 軸の調整機構を設計・製作した。電極間隔の方向 (z 方向とする) と電極面 (xy 平面とする) の駆動は独立とし、歪が発生するのを極力避ける構造とした。 piezo素子は、金属の容器に格納され、高真空における使用に耐えるものを使用した。

4. 研究成果

図 2 に開口径 a を 200 nm とした対向電極を用いた単孔電加速型静電レンズにおける荷電粒子の軌道計算の例を示す。青線が問う電位線、赤線が荷電粒子の軌道を粗あわす。図 2(a)、2(b) はそれぞれ電極間隔 $d=200$ nm および $d=20$ nm の場合の計算結果である。印加電圧は 100 V とした。図から明らかに d の小さい場合のほうが発散の程度がはなはだしいことがわかる。



(a)



(b)

図 2 単孔加速型静電レンズにおける荷電粒子機動の計算結果。(a) $d=200$ nm, (b) $d=20$ nm。

平板試料との距離 20 nm ~ 500 nm に設置した場合の平板試料上から放出される荷電粒子の軌道計算を行い、10 cm 離れた点で得られる拡大倍率を求めた。図 3 に倍率 M の電極

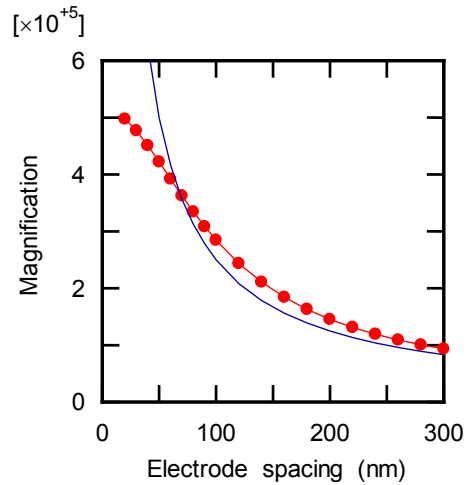


図 3 単孔加速型静電レンズの倍率 M の電極間隔 d 依存性

間隔 d 依存性を示す。青線は式(2)を表し、赤いプロットは計算で求めた倍率 M を示す。電極間隔が比較的大きいときには、近軸軌道方程式から求めた焦点距離の式(2)から求めた倍率が計算結果と比較的一致した。電極間隔が短くなるとともに、倍率の上昇は見られなくなり、一定の値に近づくことが明らかとなった。この原因は、対向電極の開口径 a よりも電極間隔 d が小さくなると、開口の影響で、電極間の等電位面が大きく単孔電極側に張り出すため、電界が印加電圧と電極間隔の単純な割り算では得られないことが原因と考えることができる。電極間隔 d の極めて小さいところで倍率 M が d に反比例せず一定の値になることは、現実的に静電拡大投影を行う場合に、電極間隔の精密な制御を必要としないという点で有利に働くと考えられる。

空間分解能 については、電極間隔 d が小さくなるとともに向上し、 $d=20$ nm において 3 nm となった。また、数値計算から得られた結果を元に空間分解能の解析的表現を求めることを試みた。電極間隔 d の比較的大きな場合には、

$$= 12d (E / V)^{1/2} \sin \quad (5)$$

と表すことができる。ここで、 E は荷電粒子の持つ初期エネルギー、 V は電極間の印加電圧である。 d が E / V の平方根に比例することは、荷電粒子の横方向の速度成分の影響が大きいことを示している。電極間隔の小さな場合については、まだ解析的な表現は得られていないが、今後の研究で求めていく予定である。

以上の計算では、平行平板形状の試料と対向電極を仮定した。対向電極が平坦な場合、微小間隙を形成することは難しい。対向電極がコーン状の形状を持つ場合について計算し、同様な結果が得られることを確認した。

このほか、開口径 a の大きさの影響についても検討した。開口径 a を変化させた場合、 a が小さいほうが倍率 M が大きくなる結果となった。この原因は、先に述べたように、倍

率 M を決めるのは、等電位線がいかに狭い間隔で並ぶか、ということである。従って、開口径 a を小さくすると、倍率も改善するものと考えられる。

高い分解能を得るためには、式(5)からわかるように、電極間電圧 V を大きくするとよい。しかしながら、狭い電極間隔に高い電圧を印加すると対向電極側からの電界電子放出による放電が問題となる。この問題を避けるためには、対向電極表面に形成される電界を低減する必要がある。これを実現する方法として、絶縁体膜を対向電極側に形成することを検討した。その結果、絶縁体膜の厚みが比較的薄いときに効果的であることが明らかとなった。この原因については調査中である。

電極間隔制御装置は、まず予備試作を行い、3軸同時駆動ではなく、2軸と1軸に分けた制御のほうがひずみ無く制御できることが明らかになった。この予備試作の結果を元に、2次試作を行い、実際に変位計を用いて位置の制御ができていることを確認した。実際に観測を行うためには、適当な試料が必要となる。

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 0件)
現在、準備中。

[学会発表](計 7件)

1. 後藤康仁、辻 博司、「短焦点距離の発散レンズを用いた二次元位置情報の拡大投影技術の検討」、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)、2016/11/29-12/1、名古屋、2PA22.
2. Y. Gotoh, S. Maeda, and H. Tsuji, “Large magnification of charged particle distribution on plane surface by electrostatic divergent lens with extremely short focal length”, The 30th International Vacuum Nanoelectronics Conference, July 10-14, 2017, Regensburg, Germany.
3. 前田然波、辻 博司、後藤康仁、「短焦点発散静電レンズによる平面上位置情報拡大投影の倍率の電極間隔依存性」、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)、2017/8/17-19、横浜、1Dp14.
4. 前田然波、辻 博司、後藤康仁、「短焦点発散性電レンズによる平面位置情報拡大投影の倍率の一様性」、第78回応用物理学会秋季学術講演会、2017/9/5-8、福岡、5p-S41-12.
5. 前田然波、辻 博司、後藤康仁、“Magnification property of electrostatic

divergent lens with extremely short focal length”, 第18回イオンビームによる表面・界面解析特別研究会、2017/12/15-16、つくば.

6. 前田然波、後藤康仁、「短焦点発散静電レンズによる平面位置情報拡大投影手法の空間分解能」、第65回応用物理学会春季学術講演会、2018/3/17-20、東京、20a-B303-10.
7. Saba Maeda and Yasuhito Gotoh, “Evaluation of magnification and spatial resolution in electrostatic divergent lens with extremely short focal length”, Atom Probe Tomography & Microscopy 2018, June 11-16, 2018, Gaithersburg, U.S.A.

[図書](計 0件)

[産業財産権]

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

- (1)研究代表者
後藤 康仁 (GOTOH, Yasuhito)
京都大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号： 00225666
- (2)研究分担者
なし
- (3)連携研究者
なし
- (4)研究協力者
()