

計測・分析装置の性能を飛躍的に高める高輝度・細束な電子源を開発

～現行の電子源に比べ輝度が100倍に！ 次世代電子顕微鏡開発に道～

配布日時：平成27年11月30日午後2時

解禁日時：平成27年12月1日午前1時

国立研究開発法人 物質・材料研究機構

概要

1. 国立研究開発法人 物質・材料研究機構 極限計測ユニットのZhang Han 主任研究員および先端材料プロセスユニット 一次元ナノ材料グループの唐 捷グループリーダーは、電子顕微鏡などの電子源として期待されているランタンホウ化物 (LaB_6 ¹⁾) 単結晶ナノワイヤの表面を原子レベルでクリーニングする技術を開発し、電子源の高性能化と安定性の向上に成功しました。さらに、開発した電子源を走査型電子顕微鏡に組み込んで高分解能の像を得ることに成功し、実際に電子顕微鏡の高輝度・細束な電子源として使用できることを示しました。
2. 電子顕微鏡の空間分解能を向上させるには、電子源から多量の電子を放出させた上で細く絞った、高輝度・細束の電子線が必要となります。現在、高分解能な電子顕微鏡では、針状のタングステンが電子源として使われていますが、空間分解能を更に向上させるためには、タングステンより電子放出が容易な LaB_6 を用いた電界放射型の電子源²⁾の開発が望まれていました。しかし、 LaB_6 が非常に硬く扱いにくいために電界放射型に必要なナノワイヤの作成が困難でした。
3. 本研究グループは米国ノースカロライナ大学 Lu-Chang Qin 教授と共同で、化学気相法³⁾を用いることで、 LaB_6 のナノワイヤからなる電子源の作製に成功しました。さらに、 LaB_6 ナノワイヤ電子源表面のクリーニング技術も開発し、電子放出特性を高め安定性の高い電子源の開発に成功しました。開発した LaB_6 ナノワイヤ電子源は、現行のタングステン電子源に比べ、電子線が細束であり、輝度が100倍、エネルギー幅が3分の2になることを確認しました。また、電界放射型顕微鏡に組み込んだ場合、電流密度が1000倍、電流の減衰なく5時間使用できることも実証しました。この LaB_6 ナノワイヤ電子源で実際にサンプルの観察を行ったところ、従来の水準を超える高分解能の電子顕微鏡像を得ることができました。
4. 今回開発した LaB_6 ナノワイヤ電子源は、従来の電子銃のタングステン電子源を交換するだけで簡単に実装することが可能です。今後、民間企業との共同研究によって、 LaB_6 ナノワイヤ電子源の実用化・製品化を進めていく予定です。
5. 本研究は、国立研究開発法人科学技術振興機構 産学イノベーション加速事業「先端計測分析技術・機器開発」要素技術プログラム「ナノ構造制御 LaB_6 次世代電界放射電子銃の開発」(研究代表者：唐 捷)の一環として得られた成果を発展させたものです。本研究成果は、英国科学誌 Nature Nanotechnology に2015年11月30日(現地時間)にオンラインで掲載される予定です。

研究の背景

近年、国内の研究機関による電子顕微鏡システムのレンズ系の開発技術が向上し、電子顕微鏡の空間分解能は世界のトップレベルになっています。更なる性能向上のために、電子ビームを放出する電子源の性能が重要になります。

電子源の性能は、電子放出源に用いる材料と、電子を放射させる方式によって決まります。高性能で実用性のある電子放出源の材料としては、タングステンと六ホウ化ランタン (LaB_6) が挙げられます。そのうち、電子放出が容易であることや化学的に安定であることなどから、 LaB_6 はタングステンに比べてはるかに優れています。また電子放射方式としては、電子源を高温にして熱電子を放射させる方式と、電子源先端を高電界にして電子を放射させる電界放射方式とがありますが、電界放射方式の方がはるかに高輝度で細く絞れた電子ビームを放射します。従って、 LaB_6 を用いた電界放射方式の電子源の開発が望まれています。しかし、 LaB_6 はタングステンの倍以上硬いため、タングステンのように電界放射方式に適したナノワイヤとすることができないという問題がありました。

研究内容と成果

NIMS の唐グループリーダーをはじめとする研究グループは、先に米国ノースカロライナ大学 Lu-Chang Qin 教授グループとの共同研究で、 LaB_6 を化学気相堆積 (CVD) 法を用いて単結晶ナノワイヤとすることに初めて成功し、 LaB_6 電界放射型電子源を世界に先駆けて開発しました (以下の文献を参照ください)。

(① Single crystalline LaB_6 nanowires, J. Am. Chem. Soc., 2005, 127, 2862. ② Field emission of electrons from single LaB_6 nanowires, Adv. Mater., 2006, 18, 87. ③ Nanostructured LaB_6 field emitter with lowest apical work function, Nano Lett., 2010, 10, 3539.)

今回、この電子源の表面をクリーニングして表面構造を精密に制御することで、性能および安定性を高めることに成功し、現在最高のタングステン電界放射電子源より電子線が細束であり、100 倍の輝度と 3 分の 2 のエネルギー幅となることを実証しました (図 1、2)。 LaB_6 単結晶ナノワイヤの表面クリーニングは、3kV の電圧を印加することで、表面の汚れを含む原子を水素雰囲気中で電界蒸発させることで行いました。表面をクリーニングすることで、使用中の劣化が極めて少ない電子源とすることができます。なお、電子源先端の表面を詳細に観察した結果、図 3 に描くように電子を放出しやすく化学的に安定な La 原子が表面を覆っている可能性があることがわかりました。これらは、従来より高輝度でエネルギー幅が狭い安定な電子源が実現した要因と考えられます。

開発した LaB_6 ナノワイヤ電子源からなる電子銃を電界放射型走査電子顕微鏡に組み込んでその特性を調べたところ、タングステン電子源に比べて、電流密度が 1000 倍大きく取れることが確認できました (図 4a)。また、放出電子は図 4b に示すように電流減衰なしに 5 時間安定して使用できることを確認できました。さらに、図 5 の電子顕微鏡像に示すように、 LaB_6 の電子銃では (a) タングステン電子源に比べてノイズが少ない、(b) 低電圧 (5kV) による電界放射において金微粒子を 20 万倍に拡大しても鮮明な画像が得られる、(c) 5.6nA の高いプローブ電流においても鮮明なイメージが得られる、(d) 多層の複合材料の界面における成分の変化を高精度でイメージ化できる、など現行のタングステン電子源等に比べて優れていることが実証されました。

波及効果と今後の展開

LaB_6 単結晶ナノワイヤ電界放射型電子源は、現在の電子源に比べ、輝度は 100 倍以上 ($10^9 \text{ A/m}^2\text{sr/V} \rightarrow 10^{11} \text{ A/m}^2\text{sr/V}$ 以上)、エネルギー幅は 3 分の 2 以下 (0.3 eV \rightarrow 0.2 eV 以下) と

飛躍的な性能向上が期待されます。電子源の性能向上は、高性能の電子源を必要とする電子顕微鏡、電子線描画装置、医療用 X 線装置など、計測・分析装置の性能を格段に向上させます。今後は、国内の電子顕微鏡メーカー等と共同で電子源の製品化と電子顕微鏡等の性能向上を目指します。

参考図



図1 従来の電子銃と今回開発した LaB₆ ナノワイヤ電界放射型電子銃の比較。従来型に比べて高輝度でエネルギー幅が 3 分の 2 の電子源を実現した。

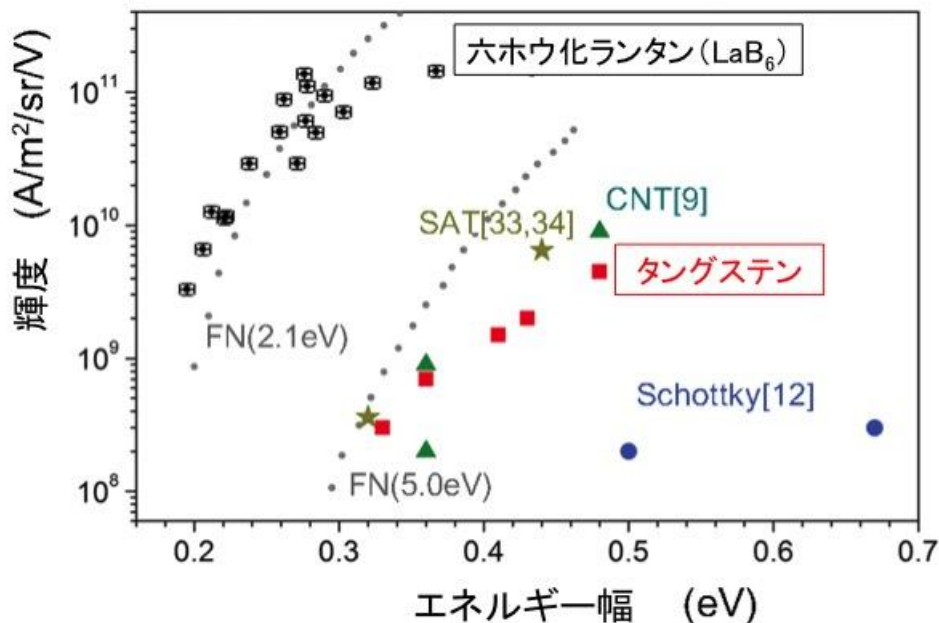


図2 電子源の特性比較。LaB₆ ナノワイヤ電子源から電界により放射される電子線は、既存の電子源から放射される電子線に比べて、エネルギー幅が狭く、輝度が高い。

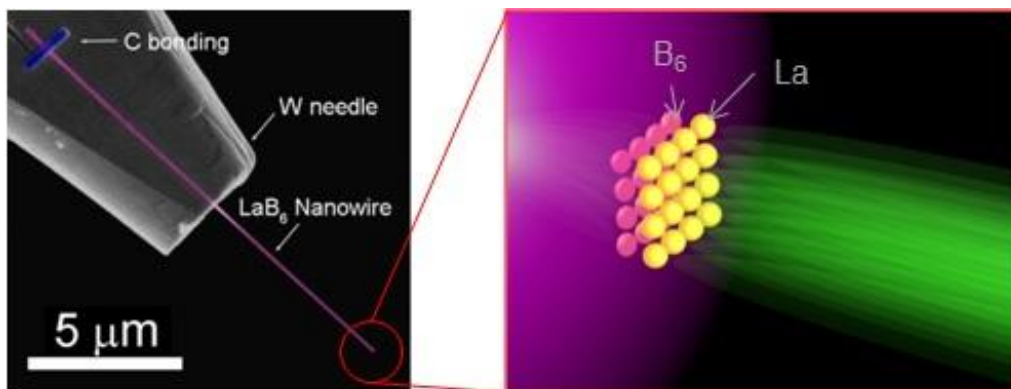


図3 左：電子源の拡大図。紫色の細い線が今回開発したLaB₆ナノワイヤ。
右：電子源終端のイメージ。La原子が最表面を覆っていると考えられる。

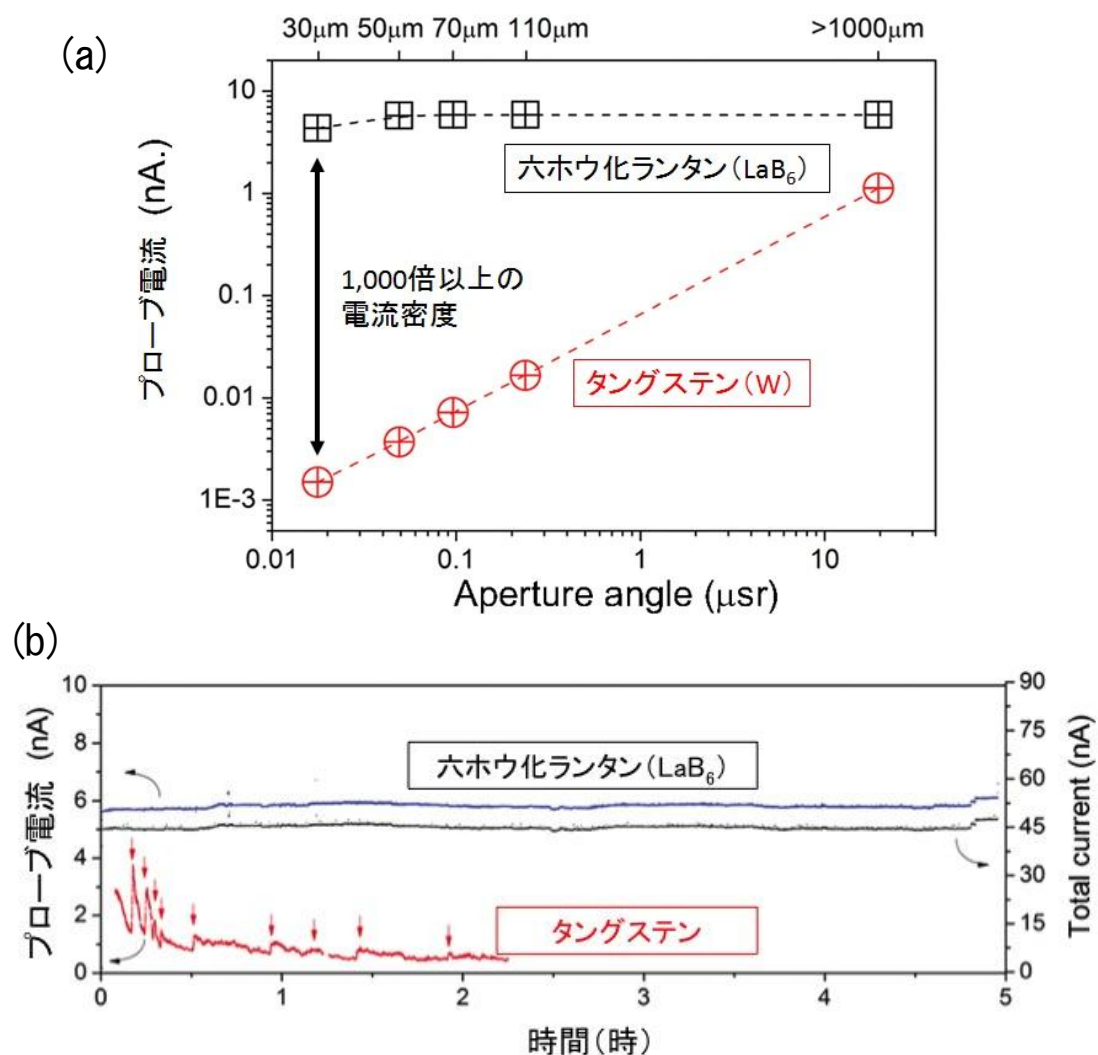


図4 (a)電子銃から20cm離れたアパーチャー（孔）を通過する電流量の比較。孔が小さい（通過する電子線が細い）時、LaB₆を使用した際の電流密度はタングステンの1,000倍以上となる。(b)長時間の使用に伴うプローブ電流の変動。LaB₆電子源では時間が経過してもプローブ電流が減衰せず安定している。

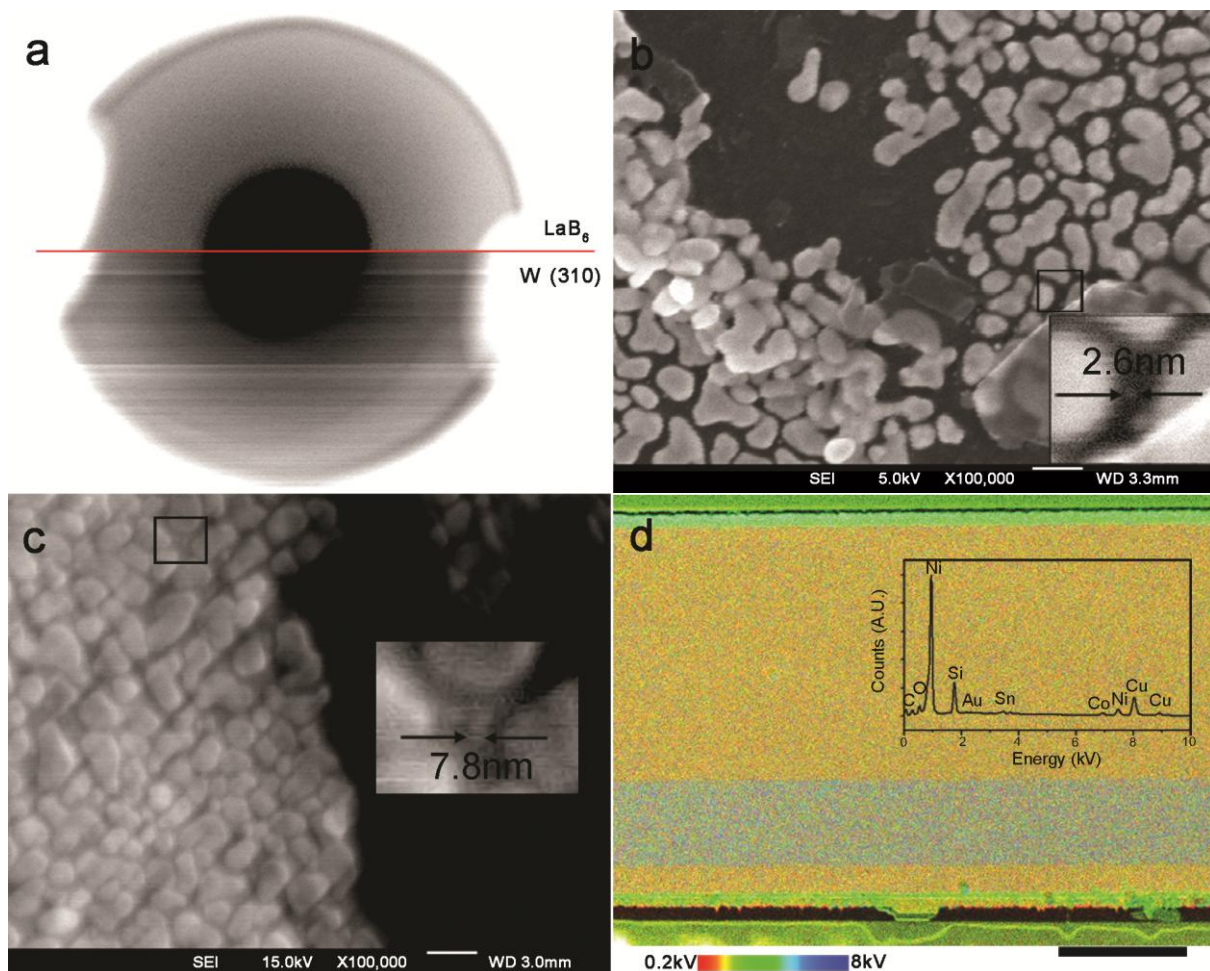


図5 LaB₆ ナノワイヤ電子源を組み込んだ電界放射型走査電子顕微鏡での観察例
 (a) 走査電子顕微鏡像の信号ノイズのLaB₆ ナノワイヤ電子源とタンゲステン電子源との比較、(b) 低加速電圧(5kV)による金粒子の走査電子顕微鏡像、(c) 高プローブ電流(5.6nA)における走査電子顕微鏡像、(d) 複合材料の化学組成変化を示す走査電子顕微鏡像

用語解説

1) 六ホウ化ランタン (LaB6)

六ホウ化ランタンは、電子放射のために必要なエネルギー（仕事関数）が低く、電子放射が容易なセラミックス。仕事関数 2.5 eV、融点 2535℃、電気抵抗 $1.5 \times 10^{-5} \Omega\text{m}$ 、硬さ 2470 kg/mm² と、電子源材料として極めて優れているが、微細加工、特にナノ加工ができなかったため、ナノワイヤとする必要のある電界放射型電子源として利用できなかった。

2) 電界放射型電子源

固体中の電子を空間にとりだす電子源の1つ。高電界により量子力学的トンネル効果により電子をとりだす。その他に熱エネルギーにより電子放射させる熱電子放射型がある。電界放射型電子源は微細な点電子源が得やすく、高い電流密度が得られるため、高分解能電子顕微鏡や電子線描画装置に適する。

3) 化学気相堆積 (CVD) 法

CVD (Chemical Vapor Deposition) 法は、原料物質を含むガスに熱や光によってエネルギーを与えたり、高周波でプラズマ化したりすることにより、原料物質がラジカル化して反応性に富むようになり、基板の上に吸着されて堆積する手法。本研究では、高温加熱により、 LaB_6 を生成させ、基板の上にファイバ状に結晶成長させている。

論文情報

著者: Han Zhang, Jie Tang, Jinshi Yuan, Yasushi Yamauchi, Taku T. Suzuki, Norio Shinya, Kiyomi Nakajima, and Lu-Chang Qin,

タイトル: “An ultra-bright and monochromatic electron point source made of a LaB_6 nanowire”

雑誌名: Nature Nanotechnology

掲載日: 2015年11月30日 16:00 (現地時間)

DOI: <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2015.276>

お問い合わせ先

<研究内容に関すること>

国立研究開発法人物質・材料研究機構
先端材料プロセスユニット、グループリーダー
唐捷 (トウ ショウ)

Tel: 029-859-2728

E-Mail: tang.jie@nims.go.jp

国立研究開発法人物質・材料研究機構
極限計測ユニット、主任研究員

Zhang, Han

Tel: 029-859-2295

E-Mail: zhang.han@nims.go.jp

<報道に関すること>

国立研究開発法人物質・材料研究機構 広報室
〒305-0047 茨城県つくば市千現1-2-1

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp