

走査電子顕微鏡の検出系評価と噴水型二次電子検出器の開発

揚村 寿英

2018年 2月

筑波大学大学院博士課程

数理物質科学研究科博士論文

博士（工学）

走査電子顕微鏡の検出系評価と噴水型二次電子検出器の開発

揚村 寿英

物質・材料工学専攻

目次

目次	i
1. 序論.....	1
1.1. 走査電子顕微鏡の発展と現状	1
1.2. 本研究の目的	6
1.3. 本論文の構成	8
2. 走査電子顕微鏡の信号検出の基礎	9
2.1. 走査電子顕微鏡の原理.....	9
2.2. 走査電子顕微鏡の信号検出	10
2.2.1. 一次電子と試料の相互作用	10
2.2.2. 後方散乱電子の放出	14
2.2.3. 二次電子の放出.....	16
2.2.4. 走査電子顕微鏡で得られるコントラスト	20
2.2.5. 走査電子顕微鏡の検出器	28
2.2.6. 走査電子顕微鏡の検出系	33
2.3. 本章のまとめ	38
3. 走査電子顕微鏡の検出系評価.....	39
3.1. はじめに.....	39
3.2. シミュレーション方法.....	40
3.2.1. 仮想対物レンズの設計	40
3.2.2. 軌道シミュレーション	42
3.3. 実験結果.....	46
3.3.1. 加速電圧 1 kV の場合	46
3.3.2. 加速電圧 15 kV の場合.....	58
3.4. コントラストに影響を与えるその他の要素	61
3.4.1. 検出器のエネルギー感度と SE/BSE 収量	62
3.4.2. SE ₃ の影響	65
3.5. 本章のまとめ	67
3.A. (補足) 更に SEM 像コントラストの理解を深めるために	68
3.A.1 Signal-to-Noise Ratio (SNR).....	68
3.A.2 コントラストと SNR の関係	71
3.A.3 実験による SNR の求め方	72
3.A.4 SNR と電子数の関係.....	73
4. 噴水型二次電子検出器の開発.....	77
4.1. はじめに.....	77
4.2. 噴水検出器の設計と基本性能検証.....	78
4.2.1. FSED の基本検出原理.....	78

4.2.2.	FSED の設計.....	79
4.2.3.	FSED の初期実験.....	81
4.2.4.	SE ₃ の影響度検証.....	82
4.2.5.	グリッド開口率の変更.....	86
4.2.6.	ロックインアンプを用いた信号検出系の構築.....	88
4.2.7.	本節のまとめ.....	91
4.3.	FSED による試料観察の準備.....	91
4.4.	FSED による SiAlON の観察.....	93
4.4.1.	Chamber-ET 検出器との比較と V _{dc} 依存性.....	93
4.4.2.	ロックイン画像と差分画像の比較.....	94
4.4.3.	本節のまとめ.....	95
4.5.	FSED による 4H-SiC の pn 接合の観察.....	96
4.5.1.	pn 接合部の FSED 画像取得.....	96
4.5.2.	Auger 電子分光装置で得た SE エネルギースペクトルとの比較.....	99
4.5.3.	考察.....	101
4.5.4.	本節のまとめ.....	102
4.6.	本章のまとめ.....	103
5.	結論.....	105
5.1.	本研究で得られた成果.....	105
5.2.	今後の展望.....	106
	参考文献.....	109
	投稿論文.....	121
	関連投稿論文.....	121
	社外発表.....	121
	関連社外発表.....	122
	謝辞.....	123

1. 序論

1.1. 走査電子顕微鏡の発展と現状

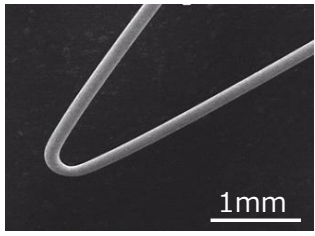
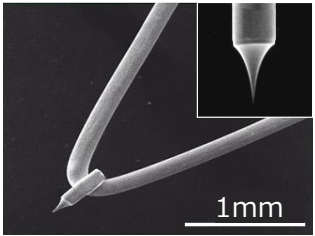
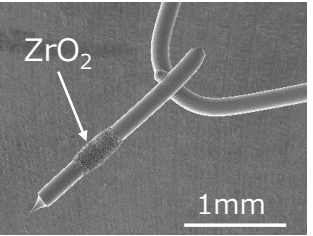
走査電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope, SEM)は、種々の材料の表面状態を nm から mm スケールで観察するのに広く利用されている。SEM を構成する要素としては、電子源、電子光学系(レンズ)、検出器(検出系)がある。それぞれの要素は、時代とともに研究が進められてきた。しかし、商用化された SEM という意味においては、多少の時代の重なりはあるものの、それぞれの要素が順番に製品に適用されてきた歴史がある。

Knoll はガラス管の中に電子銃と試料を真空封入した装置を製作し、試料からの二次電子(Secondary Electron; SE)放出の研究を行った(Knoll 1935)。この装置はテレビの陰極線管に走査像を表示しており、電子銃から放出された一次電子を集束するためのレンズは備えておらず、SEM とは言えない装置であった。SEM が発明されたのは 1938 年である(Ardenne 1938)。Ardenne が発明した装置は、薄片試料を透過した一次電子を写真乾板に記録するもので、現在の走査透過電子顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscope, STEM)に相当する。Ardenne の研究で注目すべきは、一次電子のビーム径が、電流値(輝度)、回折、レンズ収差によって制限されることを述べていたことである。この発明から、SEM が商用化されるまで 27 年の歳月が必要であった。SEM の研究は、第二次世界大戦後、Cambridge 大学の Oatley らのグループによって進められていた。最大の課題は、応答速度が速く、pA レベルの電流でも検出できる感度の高い SE 検出器を開発することだった。そんな中の 1960 年、ついに Everhart、Thornley によって、プラスチックシンチレータと光電子増倍管(PMT)を組み合わせた検出器(所謂 ET 検出器)が発明された(Everhart and Thornley 1960)。ET 検出器が発明される前は、応答が速く、SE に感度のある電子増倍管を真空内に配置していた。しかし、放出された SE を電子増倍管のダイノードに効率良く導くことが非常に困難であった。そこで、SE をシンチレータで一旦光に変換して光を真空外に導き、この光を PMT で検出する方式を採用した。絶縁体となるシンチレータの表面には 70nm の Al 膜を蒸着し、その表面に+10kV のバイアス電圧を印加することで、シンチレータが発光するエネルギー感度を向上させ、SE を効率よくシンチレータに導く機能を両立させた(2.2.5 節参照)。ET 検出器は、発明から 58 年経過した現在でも、ほとんどの SEM に搭載されている検出器である。ET 検出器の発明によって、SE の信号検出量は飛躍的に向上した。この検出器の発明もあり、Oatley は Cambridge Scientific Instrument 社と共同で商用 SEM の開発を推進し、ついに 1965 年、Stereoscan という商用機を発売し、その後 SEM を用いた研究が発展していくことになる。Oatley はこの黎明期の研究の歴史を後に纏めている(Oatley 1981)。

その後、1968 年に Crew ら(Crew *et al.* 1968)によって、冷陰極電界放出電子源(Cold Field Emitter; CFE)が発明された。Crew らは、0.125mm の W(310)線の先端を NaOH 溶液に漬け、W(310)線と電極の間に 12V の直流電圧を印加して、エッチング電流をモニタした。3min 程度印加したあと急激なエッチング電流の変化が現れ、そのタイミングで電圧印加を止めると、W(310)の先端径が 100nm 以下に先鋭化されたチップが製作できることを見出した。先端が nm オーダーのため、強い電界を印加するとトンネル効果による Field Emission 現象によって、電子を引き出すことができる。もうひとつの重要な発明は Butler レンズである。CFE チップから電子を引き出すために、チップより電位を高く設定した一枚の電極を設ける必要がある(引出電極と呼ぶ)。この電極には 3kV 程度の電圧を印加するが、引出電極を通過した後の電子のエネルギーを自

由に設定するためには、もう一枚の電極が必要である(加速電極と呼ぶ)。この 2 枚の電極によって発生する収差を低減するために、対向した 2 枚の電極の形状を解析的に計算して設計されたこのレンズを、Butler レンズと呼んでいる。これらの発明によって、従来の熱電子放出電子源と比較して 1000 倍以上輝度を向上、また、エネルギーのばらつきを 1/7~1/5 に抑制することに成功し、SEM の分解能が飛躍的に向上した。しかしながら CFE チップは加熱しないため、真空内のガス分子が CFE チップ先端に吸着・脱離することによってエミッション電流が不安定になり、最終的には放電によってチップを破壊することもある。このため CFE チップは 10^{-7} Pa (Crew らによるが、現在は 10^{-9} Pa 以下の環境に置かれて動作させている) の超高真空環境に置く必要があり、またこの条件においても、エミッション電流は変動するという課題があった。この課題を克服するため、1970 年代に Swanson ら (Swanson 1996) が、ショットキー電子源 (Schottky Emitter; ScE) を提唱した。W(100)線のチップ先端(先端径 100nm~500nm)と W 多結晶のヘアピンの間に ZrO_2 を焼結し、W ヘアピン部に 2 A~2.5 A の電流を流して 1700K まで加熱し、 ZrO_2 が W(100)上を熱拡散してチップ先端まで到達することで、W(100)の仕事関数 4.6 eV が 2.7 eV まで下がる。ScE チップと引出電極間には 1.5kV~4kV の電圧が印加され、ショットキー効果による真空準位の低下と、加熱による熱電子励起によって SE 電子が放出される(引出電圧を大きくするとトンネル効果の影響も出るため、ScE チップを TFE (Thermal Field Emitter) と呼び、ScE 電子源を FE 電子源と表現する場合も見受けられるが、原理的には間違った表現である)。ScE は CFE に比べて輝度やエネルギー幅は多少劣るものの、加熱することによりエミッション電流を数千時間以上安定に保つことが出来る上に、多くのプローブ電流を得ることができる。Swanson らの貢献によって、X 線分析 SEM への礎が築かれたと言える。表 1.1 に各電子源の比較を示す。

表 1.1 各電子源の性能比較

電子源	W アピン	Cold Field Emitter (CFE)	Schottky Emitter (ScE)
形状			
輝度 [A/cm ² /Sr/V]	1~10	10^4	10^3
放射角電流密度 [mA/Sr]	-	10~30	50~200
エネルギー幅 [eV]	2	0.3~0.4	0.6
動作温度 [K]	2500	1700	293 (室温)

1980 年代から 1990 年代前半にかけては、対物レンズの改良が鍵となった。半導体需要の増加に伴って、SEM に対して、帯電がない表面の情報を、高分解能で観察する要求が増加した。これらの要求を実現するためには、SEM の照射電圧を数 100 V から 2 kV に設定する必要がある。この時代から、各 SEM 製造メーカーによる違いが顕著になりはじめ、また汎用機と専用機の二分化が進んだと考えられる(本論文では汎用機に注目する)。それまで、発生磁場を積極的に試料側に漏らさないアウトレンズと呼ばれるタイプの対物レンズが主流であったが、①磁場を積極的に試料に漏らすセミインレンズ (Tsuno 1998)、②アウトレンズの磁場空間内を高エネルギーで加速させる電極を組み合わせ、対物レンズ出口の直前で減速させる電磁場複合レン

ズ(ブースター法: Frosien *et al.* 1989; Plies *et al.* 1999, Knell and Plies 1999, Yonezawa *et al.* 1999)、③セミア
ンレンズの磁場空間を高エネルギーで加速させつつ試料に負バイアスを印加して、試料直前で減速させる電
磁場複合レンズ(リターディング法: Pease 1967; Paden and Nixon 1968, Munro *et al.* 1988)、などの技術によ
って低エネルギー照射電圧での色収差を低減し、分解能が飛躍的に向上した。これらの発明で、理論的には
現在の SEM の光学系で実現できる限界分解能に近づいた。

更に分解能向上が必要な場合は収差補正器が必要となり、特に低加速電圧で使用されることが多い SEM で
は、球面収差だけでなく、色収差も補正する必要がある。Scherzer は、一次電子を試料にフォーカスする際
に用いる回転対称レンズは、正の収差係数(光学レンズで言う凸レンズ)しか得られず、負の収差係数(光学レ
ンズで言う凹レンズ)は実現できないため、回転対称レンズの組み合わせでは収差補正は実現されないことを
示した(Scherzer 1936)。そこで、(1)レンズ場(電場、磁場)が回転対称である、(2)レンズ場が、電子源や近
軸上の速度に依存しない、(3)レンズ場が時間で変化しない、の三つの条件のどれかを外すことで、収差が低
減できることも示した(Scherzer 1948)。(1)の条件で収差補正を実現したのが最近の透過電子顕微鏡
(Transmission Electron Microscope, TEM)で適用されている多極子を用いた収差補正器である。TEM に適用
されている収差補正は球面収差に対するものだが、Zach と Haider は、SEM に適用するために球面収差と色
収差を両方補正できる構成を提案した(Zach and Haider 1995)。これは1段目と4段目が12極子の静電場、
2段目と3段目が8極子の静電場+4極子の磁場、合計48極子を用いる構成である。ただ、特に SEM で必
要となる色収差補正も含めたこの構成は、48極子を制御する高精度な電源とその調整が必要になり、コスト
が高い。SEM の利用者からするとコストパフォーマンスが悪く、普及するかは疑問である。一方、多極子
を用いない構成も提案されている。例えば Aken らは、電子の平均自由行程が 50 eV 以下になると増加する
ことに注目し、一次電子が薄膜を通過する際のエネルギーをほぼゼロとし、通過の際に起きる発散作用によ
って負の収差係数を生成し、球面収差、色収差が両方補正できることを示している(Aken 2003)。これは上記(2)
の条件を外したことから得られる結果である。また Khursheed は、電子源をパルス化し、一次電子が対物レ
ンズを通過する際の時間と同期を取りながら静電場で作る対物レンズ場を変調させることで、色収差が補正
できることを示している(Khursheed 2005)。これは上記(3)の条件を外したことから得られる結果である。た
だし、どちらの技術も、商用 SEM に使われるには至っていない。

色収差を補正する方法は、収差補正器によって負の色収差係数を発生させる方法もあるが、モノクロメー
タを用いる方法もある。一次電子を電場と磁場の直交場(ウイーンフィルター)を通過させることでエネルギ
ーを分散させ、分散させた位置にスリットを置いて一次電子の通過エネルギーを選択するモノクロメータが
提案されており(Mook and Kruit 1999, 2000)、近年になって再整理されている(Tsuno 2011, Plies *et al.* 2011)。
また最近では、同じ形状で左右反対称の静電場を形成する二つの円筒レンズを用いたモノクロメータも提案
されている(Ogawa and Cho 2016, 2016)。これは、一次電子が1つ目の円筒レンズを通過する際に、軌道を
光軸から大きくシフトさせてエネルギーを分散させ、分散させた位置にスリットを置いてエネルギー選択し、
その後一次電子を通過させ、次の円筒レンズで一次電子の軌道を元の光軸上に戻す構成となっている。ど
ちらの技術も、商用 SEM に使われるには至っていない。一方、旧 FEI 社(現 Thermo Fisher Science 社)が 2009
年、モノクロメータを商用 SEM に初めて搭載した(Young *et al.* 2009)。このモノクロメータは、回転対称静
電レンズの静電場と、それによって一次電子がフォーカスする点の間にスリットを設け、一次電子が静電レ
ンズ場を軸から大きくはずれて通過する際にエネルギー分散させたところでスリットによってエネルギーを
選択し、フォーカス点に設置された偏向器を用いて光軸上に一次電子を戻す技術を採用している。

以上のように、SEM で極小の一次電子プローブを形成するために、収差補正やモノクロメータの研究が 1990 年代以降も進んでいるものの、最も本質である対物レンズの改良は 1980 年代～1990 年代前半でほぼ完成している。

1990 年代後半から 2000 年代に入ると、検出器(検出系)の開発が主流となる。先述のとおり、この時代までは低加速電圧での分解能向上に重点が置かれていたため、短い作動距離(Working Distance, WD)で試料から放出された信号(SE、BSE(Back Scattered Electron, 後方散乱電子)をより多く検出することに主眼が置かれていた。その頃 LEO 社(現 Carl Zeiss 社)が、In-Lens SE 検出器、EsB(Energy Selective Backscattered)検出器、AsB(Angular Selective Backscattered)検出器を SEM 光学軸上に配置した SEM を製品化した。その概略図を図 1.1 に示す。LEO 社の SEM は、ブースター法を適用した電磁場複合対物レンズを搭載している。LEO 社は、図 1.1 に示したように SE と BSE の軌道がカラム(一次電子を集束・偏向するための構成要素群)内でフォーカスする点が変わり、BSE は In-Lens SE の中心穴(一次電子を通過させるために必ず必要な穴)付近にフォーカスして In-Lens SE 検出器を通過して EsB 検出器に到達するため、In-lens SE 検出器で BSE は検出されない、逆を言えば、In-Lens 検出器では SE だけ検出し、BSE は検出できない、という検出原理を説明している(第 3 章で議論するが、この説明は正しくない)。また、EsB 検出器にはエネルギーフィルターが設けられ、照射エネルギー 2kV 以下の反射電子のエネルギー弁別を実現している(エネルギー分解能は数 100V 程度と推定される)。AsB 検出器は、検出領域が動径方向に選択できる Si 半導体素子を採用し、反射電子の角度弁別を実現した。また、従来から採用されている試料室内に配置される Chamber-ET 検出器も備えてある。これらの検出器を駆使して、これまでの SEM で観察できなかったコントラストが見えるようになってきた(例えば Tachibana 2006, Jaksch 2009, Kuwano *et al.* 2010, Jaksch 2011, Aoyama *et al.* 2011, Nagoshi *et al.* 2013, Sato 2015, Nagoshi *et al.* 2016)。見えていなかったコントラストが見え始めたことの“なぜ”から、(i) 電子源を含む電子光学系、(ii) 試料と電子の相互作用、(iii) 検出器を含む検出系の観点から議論が続いている。(i)に関しては先述のように電子源、対物レンズ、収差補正器、モノクロメータまで、製品の SEM に搭載されているかどうかは別にしても、理論的には議論は尽くされている。また(ii)に関しても第 2 章で説明するが、試料内で発生している現象について十分説明されており、また近年の情報処理技術の高速化によってモンテカルロ法を用いて試料内相互作用の影響が高精度に計算できるようになった。ただし、得られる SEM 像のコントラストは試料内相互作用だけでは説明ができない。そのためには(iii)検出系の情報が重要であるが、各 SEM 製造メーカーによってそれぞれ特徴があり、またメーカーもその詳細を積極的に開示していない。検出系の情報が開示されない状況で、複雑になっている SEM 像コントラストを説明することは非常に困難であり、SEM を利用する研究者にとっては、SEM で得られるコントラストを本質的に理解するまでには至っていない。

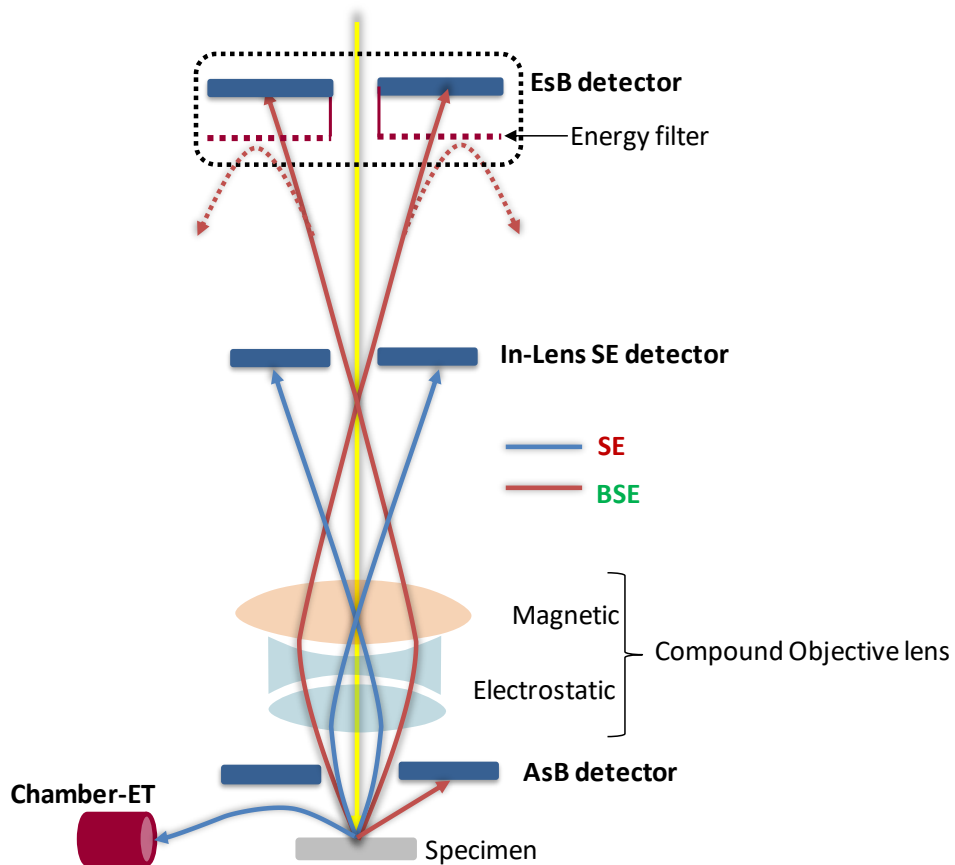


図 1.1 旧 LEO 社の SEM 検出系

1.2. 本研究の目的

SEM の性能は、分解能とコントラストに分類できる。分解能は、観察する試料の対象物が他の対象物と分離して如何にシャープに見えるかを示す指標、コントラストは、観察する試料の対象物が他の対象物と分離して如何に鮮明に見えるかを示す指標である。この二つの指標を、先述の(i)電子源・電子光学系、(ii)試料と電子の相互作用、(iii)検出系との関係に分けて整理すると、表 1.2 のように説明できる(参考のために、表 1.3 に、コントラストに影響する因子の詳細を記載しておく)。検出系に関しては、放出される SE や BSE のエネルギーや角度、その検出量が非常に重要な要素となっている(Ura 2013)。

そこで本研究では、最近の SEM に装備されている三つの検出器(対物レンズ上に配置される Through-The-Lens (TTL) 検出器(In-Lens 検出器とも呼ばれる)、対物レンズ直下に配置される Under-The-Lens(UTL)検出器、試料室に配置される Chamber-ET 検出器)の特性を、①試料から放出された電子から、どのエネルギー、どの角度の電子が検出器に到達したかを示すアクセプタンス、②試料から放出された全電子のうち、何個の電子が検出器に到達するかを示す収集効率、を導出し、WD、加速電圧別にシミュレーションで検証する。

更に本研究では、収集効率とアクセプタンスが容易に算出でき、WD に依存しないエネルギーフィルターを搭載した噴水型二次電子検出器(FSED)を開発する。種々の改良を重ねた FSED の基本性能を評価し、Cu (金属)上の SiAlON(絶縁物)と β -SiAlON(半絶縁物)、4H-SiC(半導体)を FSED でそれぞれ観察し、二次電子像のコントラストについて議論する。

本研究の目的は、これらの結果により、複雑になった SEM 像のコントラスト形成理論についての理解を進め、材料研究に発展に貢献することにある。

表 1.2 SEM 画像のシャープさとコントラストに関連する要素と、詳細な因子

要素	シャープさ(分解能)	鮮明さ(コントラスト)
電子源・電子光学系	電子源輝度 加速電圧 プローブ電流 収差特性	電子源輝度 加速電圧 プローブ電流
試料と電子の相互作用	加速電圧 (浸入深さ)	材料 (原子番号、SE/BSE 収量) 傾斜 電位 チャネリング (結晶方位) など
検出系	角度依存 エネルギー依存 信号処理	角度依存 エネルギー依存 収集効率 検出方法 (直接、変換など) 信号処理

表 1.3 コントラストに影響する因子の詳細

性能因子	コントラストへの影響（シャープネスと材料固有の特性は非考慮）
加速電圧 電子光学系条件	<ul style="list-style-type: none"> プローブ電流 試料への浸入深さ（膜や層構造の SEM 観察） 電子放出率（検出電子の数や、表面電位状態（= 結局、数）に影響） ビーム径（ナノ粒子などビーム径よりも小さいものを観察する場合は、ビーム径を考慮したコントラスト計算が必要） ビーム開き角（結晶材料に対しては、チャネリング深さに影響）
試料	<ul style="list-style-type: none"> 元素（原子番号） 凹凸（傾斜やエッジ効果） 検出器の位置関係（陰影） 局所電場・磁場 放出電子のエネルギー・角度分布（ビーム照射位置によるアクセプタンスや検出効率の違いが発生）
WD	<ul style="list-style-type: none"> アクセプタンス、収集効率
検出方式	<ul style="list-style-type: none"> 変換板などを利用した間接検出方式の場合、検出器に到達する電子の数は増えるが、統計ばらつきが増えるために Signal-to-Noise Ratio (SNR) が悪くなる。
検出器種類	<ul style="list-style-type: none"> 検出器入射面の有効感度面積（例えば、マイクロチャンネルプレート (MCP) は有効感度面積が 60% しかなく、入射電子の 40% をロスする。） エネルギー感度（感度外のエネルギーの電子は、検出器に入射しても信号にならない。）
信号処理方式	<ul style="list-style-type: none"> 検出器に到達した後、“数”として処理（電子計数法）するか“波高・電圧値”として処理（アナログ法）するかで、SNR が変わる（アナログ法の方が SNR が悪い）。 特に検出器の初段で発生する“量子”の数で、検出器出力の波高のばらつきが変化する（ばらつきが大きい方が、SNR が悪くなる）。
画像処理 信号処理	<ul style="list-style-type: none"> LUT による画像処理（デジタル画像の階調が深くなり、情報欠落なく階調調整が可能となっている。もともとの検出器が検出している情報以上の情報は得られないのは周知だが、微小な階調差は、人の目では認識できない場合もある）。 ロックインアンプ検出系の採用 各信号の統計過程→逆に統計過程がニューラルネットワークなど、現在発展している AI 技術を用いれば、SNR を向上させることも可能と推定。

1.3. 本論文の構成

本論文は全 5 章で構成されている。第 2 章では、SEM のコントラストを議論する上で重要な一次電子と試料の相互作用や、SE、BSE の特性、SEM で得られる一般的なコントラスト、そして検出器について議論する。第 3 章では、ブースター法を用いた電磁場複合対物レンズを搭載した SEM において、TTL 検出器、UTL 検出器、Chamber-ET 検出器で検出できる SE や BSE のアクセプタンスと収集効率を、加速電圧 1 kV と 15 kV、WD が 3~20 mm の条件でシミュレーションにより評価し、得られた新しい知見を整理する。第 4 章では、第 3 章の議論に基づき開発した FSED の基本性能の評価を行う。FSED を用いた実試料観察も行い、得られるコントラストから検出した SE が持つ情報について議論する。第 5 章では、第 3 章と第 4 章で述べた結果に基づいて総括をし、今後の展望を述べる。なお、第 3 章の最後には、SEM の理論 SNR (Signal-to-Noise Ratio) とコントラストの関係、SNR の求め方、SNR と検出器に入射した電子の個数との関係について、補足として記載する。参考文献、投稿論文、社外発表は巻末に掲載する。

2. 走査電子顕微鏡の信号検出の基礎

2.1. 走査電子顕微鏡の原理

SEM に関する総論は Goldstain ら (2003) や Reimer (1998) によって纏められている。まず SEM の原理について、図 2.1 を用いて簡単に説明する。

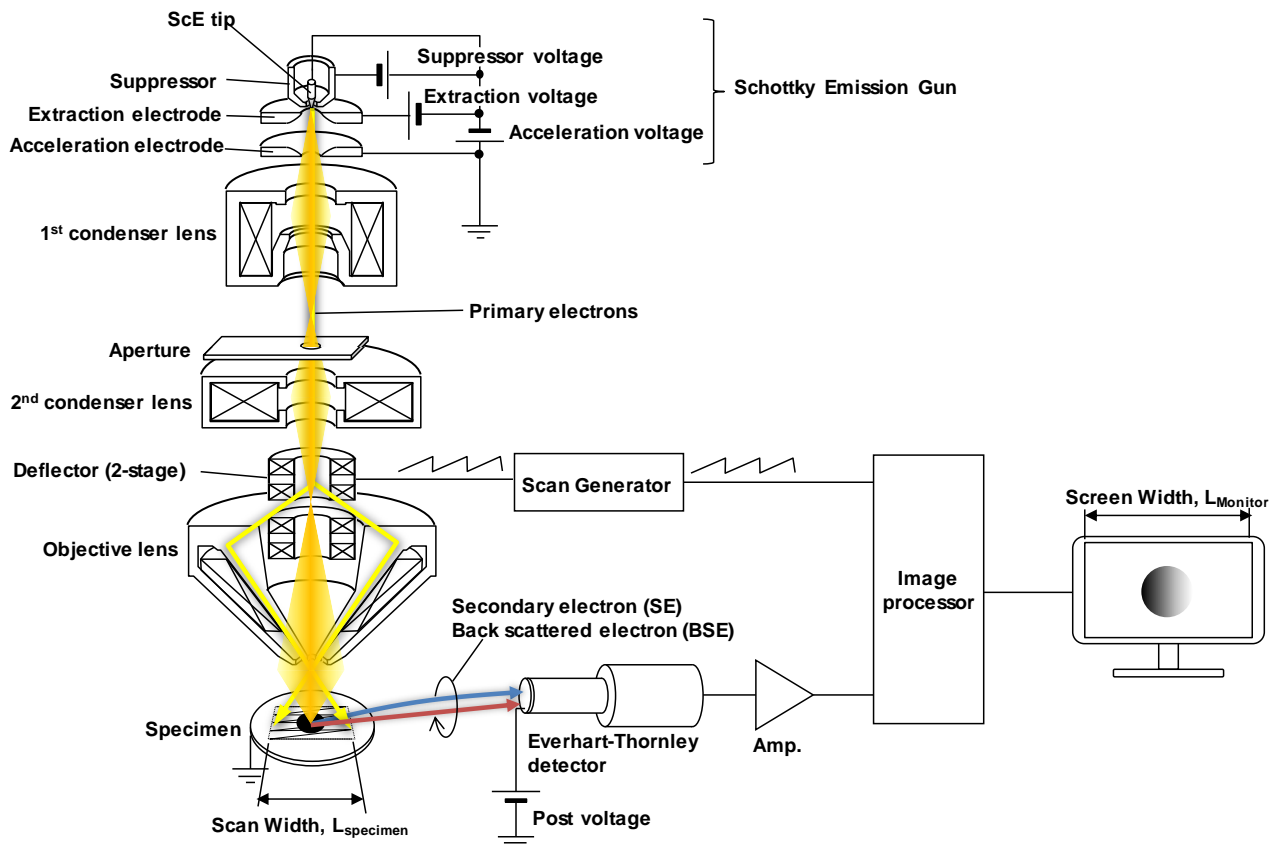


図 2.1 走査電子顕微鏡の原理説明図

図 2.1 の構成は、ショットキー電子源と前章で述べたバトラーレンズを組み合わせたショットキー電子銃を搭載している。ScE チップは 1700 K に加熱するため、その際に放出される不要な熱電子がカラム内に入らないようにサプレッサを設けて、熱電子を追い返すようになっている。ScE チップから放出された一次電子は、第 1 コンデンサレンズ(C1)、第 2 コンデンサレンズ(C2)、対物レンズを介して試料上に照射される。C1 と C2 の間には、プローブ電流を調整するための絞りが設けてあり、通常 $\phi 20 \mu\text{m} \sim \phi 100 \mu\text{m}$ 径が使用される。C1 のクロスオーバー位置を調整することで絞りを通過するプローブ電流量を調整できる。C1 のクロスオーバー位置に連動して C2 のクロスオーバー位置を調整し、対物レンズ通過後、試料に照射する際の最適な開き角を実現する。一次電子のビーム径について詳細を議論するのは、本論文の目的ではないので記載しないが、以下の理由により試料に入射する際の開き角 α_i は、ビーム径を決める重要なパラメータとなる。①回折収差と電子源輝度に影響を受けるビーム径は α_i^{-1} に、②色収差に影響を受けるビーム径は α_i に、③球面収差に影響を受けるビーム径は α_i^3 に、それぞれ比例する。ビーム径はこれら四つの影響を受けて決まるが、比例項

と反比例項があるために、ビーム径が最小となる最適開き角 α_i^{opt} が必ず存在する。C2は α_i^{opt} を実現するために動作させている。試料上に照射された一次電子は、2段の偏向器を用いて対物レンズの中心を通過させ、試料上を走査幅 $L_{specimen}$ で任意に設定する時間で走査する。この際、各走査点から放出されたSEやBSEは、図2.1の例ではET検出器で検出されて電気信号に変換され、アンプを介して走査・画像処理プロセッサに入力される。この電気信号を走査信号に同期させて、PCスクリーン上(画面幅 $L_{monitor}$)に表示する。このとき、SEMの倍率 M は $M=L_{monitor}/L_{specimen}$ で表示される。なお、図2.1の一次電子のフォーカスや偏向軌道は、原理を理解するために誇張して記載してある。実際の開き角は5~20 mrad程度、偏向角は最大で200 mrad程度である。

2.2. 走査電子顕微鏡の信号検出

本節は、Goldstainら(2003)、Reimer(1998)、Suzuki(2009)を参考にして説明する。

2.2.1. 一次電子と試料の相互作用

一次電子が試料内に入射すると、試料原子が形成するポテンシャルの影響で、弾性散乱と非弾性散乱を繰り返す。弾性散乱は、試料原子の電子雲によって遮蔽された原子核のクーロン力に起因する。原子核に与えるエネルギーはmeVオーダーのため、散乱過程でのエネルギー損失は無視できるが、入射電子の進行方向は一回の散乱で変化する。複数回の弾性散乱によって最終的には試料から一次電子が放出され、それらがBSEとなる。弾性散乱断面積 σ_{el} は次式で示されている。

$$\sigma_{el} = \int_0^\pi \frac{d\sigma_{el}}{d\Omega} \cdot 2\pi \sin\theta d\theta = \int_0^\pi \pi \frac{e^4 Z^2}{2E^2} \left(\frac{E + E_0}{E + 2E_0} \right)^2 \frac{\sin\theta}{(\sin^2(\theta/2) + \alpha)^2} d\theta \quad (2.1)$$

ここで、 e は素電荷(1.602×10^{-19} C)、 Z は原子番号、 E は入射電子のエネルギー、 E_0 は電子の静止質量のエネルギー(511 keV)、 θ は散乱角度、 α はラザフォード散乱に関連する遮蔽係数で $\alpha = 3.4 \times 10^{-3} Z^{2/3}/E$ で計算できる。 σ_{el} から、入射電子が散乱されて次の散乱過程の影響を受けるまでの移動距離、すなわち弾性散乱電子の平均自由行程 λ_{el} を求めることができる。

$$\lambda_{el} = \frac{A}{N_A \rho \sigma_{el}} \quad (2.2)$$

ここで、 A は原子量[g/mol]、 N_A はアボガドロ数(6.022×10^{23} /mol)、 ρ は原子密度[g/cm³]である。

一方、非弾性散乱は、入射電子が試料内の電子を励起しながら(=入射電子のエネルギーを損失しながら)、試料内を移動する散乱過程である。このエネルギー損失は除々に発生するので、入射電子はそのエネルギーを失うまで多くの散乱を繰り返し、試料内をほぼ直進して伝播していく。非弾性散乱による試料内の電子励起には以下の相互作用がある。①価電子帯、伝導帯の固体プラズマ振動による電子の集団励起(表面と体積プラズモン損失($\Delta E=5-30$ eV))；②バンド間遷移とバンド内遷移($\Delta E < 30$ eV)；③内殻電子の電離；④電子対電子散乱(コンプトン散乱、 $\Delta E < E/2$)による個別電子の励起、である。これらが関連するエネルギー損失と試料内を移動する距離の関係は、Betheの阻止能で表される。

$$-\frac{dE}{ds} = 7.85 \times \frac{2\pi e^4 N_A Z \rho}{AE} \ln \left(\frac{1.166E}{J} \right) \quad (2.3)$$

ここで、平均イオン化ポテンシャル J [eV] は次式の関係で求めることができる。

$$J = \begin{cases} 9.76Z + 58.6Z^{-0.19} & \text{for } Z \geq 13 \\ 11.5Z & \text{for } Z < 12 \end{cases} \quad (2.4)$$

Joy と Luo(1989) は、低エネルギー入射になるとエネルギー損失に寄与するイオン化の過程が減ることを考慮し、 J を J^* で置き換えている。

$$J^* = \frac{EJ}{E + kJ} \quad (2.5)$$

ここで、 $k = 0.731 + 0.688 \log_{10} Z$ である。例えば、20 keV の一次電子が Fe に入射した場合、(2.3)式を計算すると 6.32 eV/nm となる。

一次電子は、弾性散乱、非弾性散乱を試料内で繰り返す。以降、散乱を一次電子と試料の相互作用とも呼ぶ。Kanaya と Okayama(1972) は一次電子が相互作用しながら試料内を最大どこまで侵入できるか(=最大飛程 R [nm]) を次式で示している。

$$R = 27.6 \frac{A}{\rho Z^{8/9}} E^{5/3} \quad (2.6)$$

C($Z=6$) と Au($Z=79$) を例にすると、10 keV の一次電子に対して、 R はそれぞれ 1.4 μm 、0.27 μm 、0.5 keV の一次電子に対して、9.8 nm と 1.8 nm となる。さて、一次電子と試料の相互作用は、モンテカルロ法を用いてシミュレーションすることができる(最近では、石谷(Ishitani 2008) がシミュレーションを用いた試料内の振る舞いについて整理している)。その例として、故神田公生氏(旧(株)日立サイエンス社)が開発したシミュレーションソフトがある[脚注 1]。このソフトを用いて C と Au に 10 keV と 0.5 eV の一次電子を垂直入射させたときの、試料内の電子の散乱の様子を図 2.2 に示す。(2.6)式で計算した結果とシミュレーションの結果は、比較的良い一致を示している。

以上述べた一次電子と試料の相互作用によって、試料からは種々の信号が放出される。図 2.3 に、試料内での電子の散乱と試料表面から放出される信号を、図 2.4 に試料から放出された電子のエネルギー分布を示す。図 2.3、図 2.4 は、あくまで現象を説明するための模式図である。

50 eV 以上のエネルギーで試料表面から放出される”一次電子”を BSE と定義している。BSE のエネルギー分布には、一次電子と同じエネルギー付近にピークが存在する。この部分の BSE は、1 回の弾性散乱により一次電子の入射方向に放出される電子(=反射電子)や、試料内で複数の弾性散乱を繰り返して試料から放出される低エネルギー損失 BSE(low-loss BSE)が含まれる。またこれらの電子のうち、上記①の励起電子を生成したことによりエネルギーを失った分、ピークが低エネルギー側シフトしたプラズモンロスピーク、上記③の励起電子を生成したことによりエネルギーを失った分、低エネルギー側にシフトしたコアロスピークが存在する。また BSE は、上記④の影響や複数の弾性散乱過程を経て放出されるため、連続的なエネルギー分布を示す。

一次電子と BSE が試料を通過する際、上記①～④の励起過程によって生成された励起電子のうち、最終的に試料表面のポテンシャル障壁を越えて試料から放出される電子を SE としている(厳密には 50 eV 以下で試料表面から放出される一次電子も SE に含まれる)。このうち、一次電子によって励起された SE を SE_1 、BSE によって励起された SE を SE_2 と呼ぶ。 SE_1 や SE_2 によって励起される SE も存在するが、エネルギーが低いため寄与は小さい。SE も BSE と同じく、上記④の影響や複数の弾性散乱過程を経て放出されるため、連続的なエネルギー分布を示す。

脚注 1 <http://www.vector.co.jp/soft/wind95/edu/se059369.html> から現在もダウンロードできる。

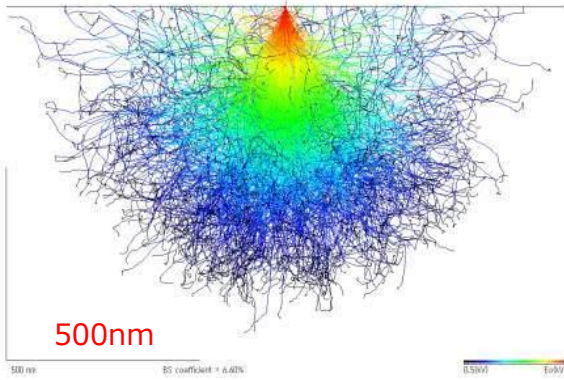
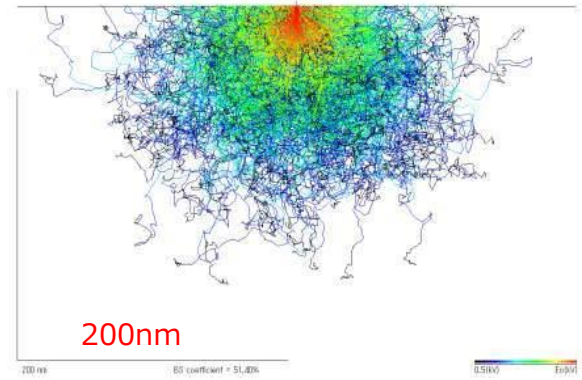
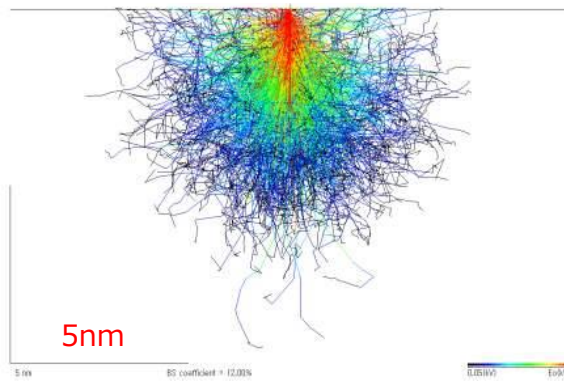
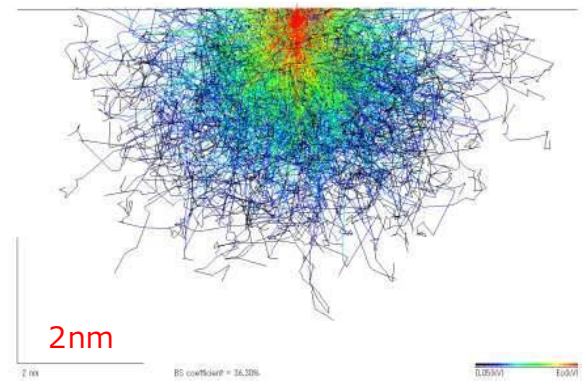
10keV electrons \rightarrow C(Z=6)10keV electrons \rightarrow Au(79)0.5keV electrons \rightarrow C(Z=6)0.5keV electrons \rightarrow Au(79)

図 2.2 10 keV と 0.5 keV の一次電子を Au と C に垂直入射したときの試料内の電子の散乱の様子

また、相互作用の過程で、SE や BSE だけでなく、特性 X 線、Auger 電子、CL(Cathodeluminescence)も試料から放出される。特性 X 線と Auger 電子は、上記③の内殻電子の電離によって、外殻電子の電子が内殻の空準位に遷移する際に放出される。特性 X 線と Auger 電子の放出は、同時、あるいはどちらかが起こるエネルギー緩和過程である。特性 X 線は、エネルギー分散型 X 線分光検出器(Energy Dispersive X-ray spectrometer, EDS)を用いて検出できる。現在、7~8 割の SEM に搭載され、特性 X 線が元素に固有の単一エネルギーを持つことから元素同定・定量分析、元素マッピング画像取得など多用されている。ただし、特性 X 線の透過能は電子と比較すると強く、相互作用領域全体から放出される。

一方 Auger 電子は、高分解能なエネルギーアナライザーを搭載した Auger 電子分光装置で検出できる。Auger 電子の非弾性散乱の平均自由行程(inerastic mean free pass, IMFP)が 0.5~5 nm と非常に短いため、Auger 電子は表面敏感な情報を持っている。そのため、一次電子を試料に照射するところまでは SEM と全く同じ原理であるが、表面の酸化や hidrocarbon によるコンタミネーション(Hren 1979)があると分析ができないため、試料を超高真空内に入れる必要がある。

CL は、上記、電子励起によって生成された電子-正孔対が再結合する際に発光する(上記②も関連する)。CL は、半導体の価電子帯、伝導帯、ドナー準位、アクセプター準位などの多くのエネルギー準位間の遷移エネルギーに対応した波長で発光する。この発光は、欠陥固有のエネルギー準位からも発生するため、半導体中の不純物や欠陥の分析に使用されている。CL も特性 X 線と同じく電子と正孔が再結合した領域全体から放出される。従って、CL で試料表面を分析したい場合は、図 2.2 に示したとおり、一次電子の最大飛程を小さくすれば良く、加速電圧を下げることで対応できる。

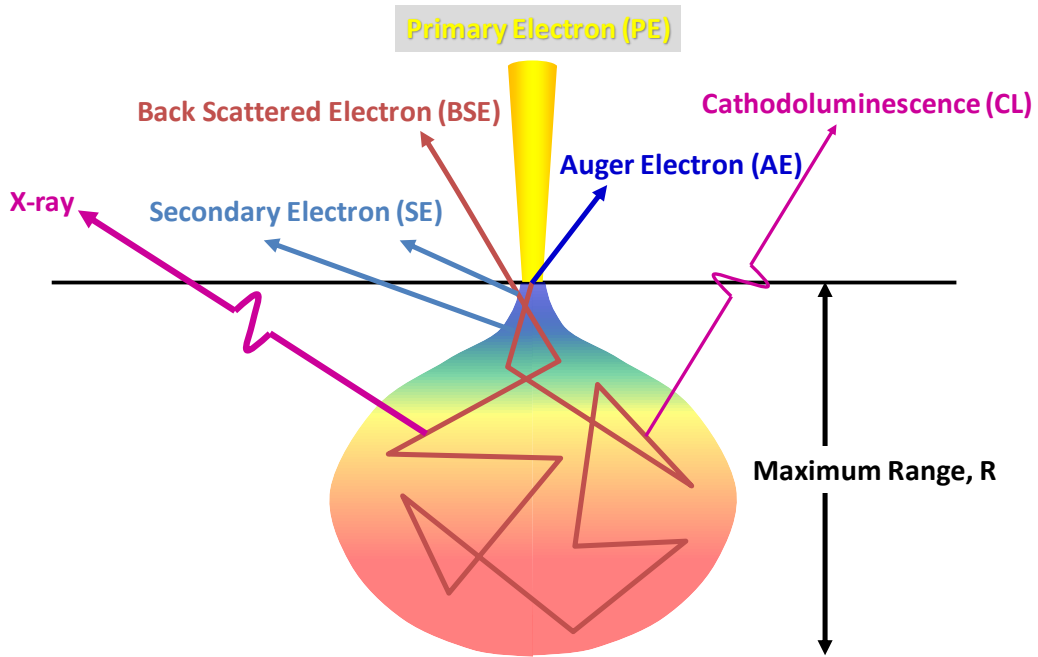


図 2.3 試料内での電子の散乱と試料表面から放出される信号の模式図

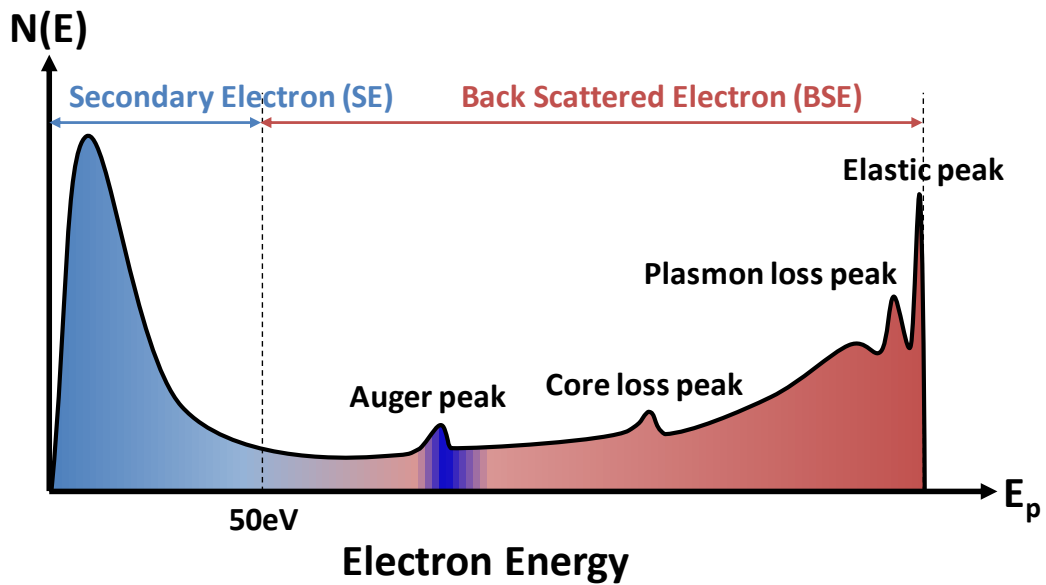


図 2.4 試料から放出された電子のエネルギー分布の模式図

本論文では、特性 X 線、Auger 電子、CL については以降議論しない(第 4 章で Auger 電子分光装置は用いるが Auger 電子を検出する訳ではない)。次節では、BSE と SE が試料から放出する過程について説明する。

2.2.2. 後方散乱電子の放出

BSE に関しては、Niedrig(1981)によって 1980 年までの研究が纏められている。

A. BSE 収量

BSE 収量 η は、入射した一次電子の個数 n_p と、試料から放出された BSE の個数 n_{BSE} の比で表される。 η は原子番号 Z と一次電子の入射角度 θ (0° は垂直入射)の関数として次式で表される。

$$\eta(Z, \phi) = (1 + \cos \theta) \frac{9}{\sqrt{Z}} \quad (2.7a)$$

$$\eta(Z, 0) = -0.0254 + 0.016Z - 1.86 \times 10^{-4}Z^2 + 8.31 \times 10^{-7}Z^3 \quad (2.7b)$$

また、1keV 程度の低加速では、エネルギー E にも依存するとして、

$$\begin{aligned} \eta(Z, E) &= E^m C \\ m &= 0.1382 - (0.9211/\sqrt{Z}) \\ C &= 0.1904 - 0.2235 \ln Z + 0.1292(\ln Z)^2 - 0.01491(\ln Z)^3 \end{aligned} \quad (2.7c)$$

で計算できる。(2.7)式から、 η は原子番号 Z に依存して増加するので、BSE を検出すれば組成の情報を得ることができる。一方、1 keV 以下になってくると(2.7)式は成り立たなくなり、例えば 100 eV の一次電子の入射では、原子番号が大きい Au($Z=79$)よりも、原子番号が小さい C($Z=6$)の方が 3~4 倍大きくなるため(Müllerová 2001)、コントラストが反転する。

複数の元素が含まれる場合の η は、

$$\eta = \sum_i C_i \eta_i \quad (2.8)$$

で計算できる。ここで C_i は質量密度を表し、以下で計算できる。

$$C_i = \frac{\alpha_i A_i}{\sum_i \alpha_i A_i} \quad (2.9)$$

α_i は i 番目の原子量 A_i が全体の原子量に占める割合である。

B. BSE の脱出深さ

BSE が試料内から脱出する深さ Λ_{BSE} は、(2.6)式で求めた一次電子の最大飛程 R から $\Lambda_{\text{BSE}} \approx R \times 0.5e^{-0.022Z}$ で概算できる。先述の C($Z=6$)と Au($Z=79$)を例にすると、10 keV の一次電子に対して、 Λ_{BSE} はそれぞれ 606 nm、24 nm、0.5 keV の一次電子に対して、4.1 nm と 0.2 nm となる。

C. BSE のエネルギー分布

BSE のエネルギー分布は、次節と第 3 章で示すように、SE のように関数では表現されていない。そこで神田のモンテカルロシミュレーションソフト(脚注 1)を用いて、Au、Mo、Si、Al、C の BSE のエネルギー分布を計算した結果を図 2.5(a)に示す。図 2.4 で示したプラズモンロスピークを確認することはできない。Ding らの誘電関数を用いたシミュレーションでは、プラズモンピークを確認することができる(Ding and Shimizu 1995, Ding *et al.* 2001)。EDS のシリコンドリフト検出器(Silicon Drift Detector, SDD)は、通常は BSE にも

脚注 1 <http://www.vector.co.jp/soft/wind95/edu/se059369.html> から現在もダウンロードできる。

脚注 2 第 3 章の図 3.3 (b)で示す図には、弾性散乱ピークの横に緩やかな肩は見受けられるが、理由は不明で、シミュレーションモデルの違いによるものと推定する。

感度があるため、SDD に入射する前に永久磁石を用いたコリメータ設けて BSE を SDD に入射させないようにしている。このコリメータを外して BSE を SDD に直接入射させてエネルギー分布を取得した結果を図 2.5(b)に示す。SDD のエネルギー分解能は Mn の K α 線の 5.894 eV で 130 eV 程度であるから、SDD でプラズモンピークは観察できないが、図 2.5(a)のモンテカルロシミュレーション結果と、それぞれの元素で分布の傾向が一致することが分かる。

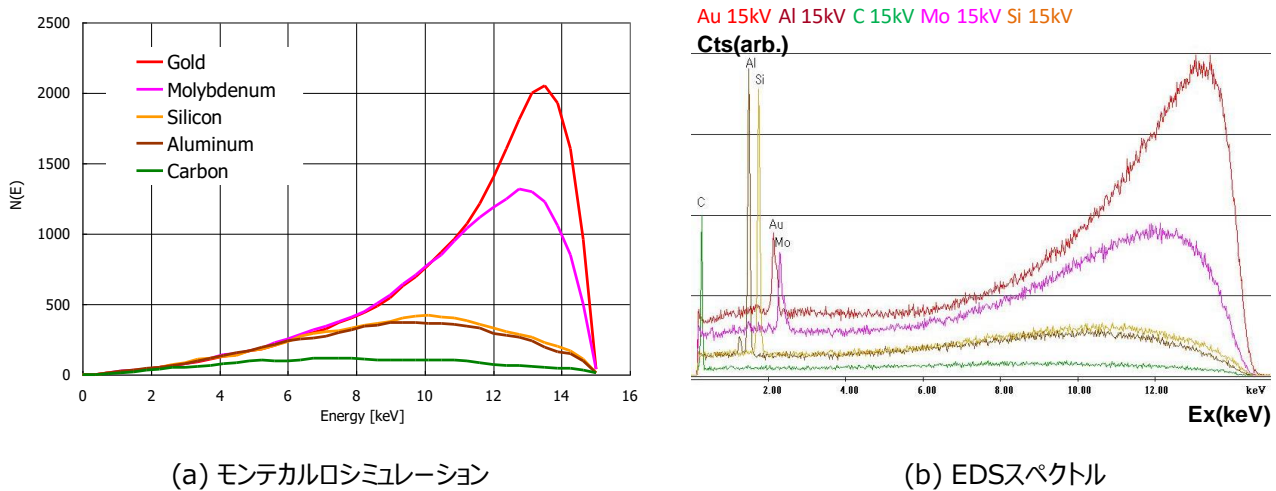


図 2.5 各元素の BSE のエネルギー分布

D. BSE の角度分布

試料から放出された BSE の角度分布は、一次電子が試料に垂直(0°)に入射する場合はコサイン則に従い、第 3 章で示す(3.6)(3.7)式で示すことができる。一方、一次電子の入射角度が 60° を超えてくると、入射方向とは反対方向に入射電子に近い角度で試料から放出される(一次電子と BSE の間の角度は、垂直方向を介して 120° となる)。これは、一次電子の侵入深さが浅くなっていくため、弾性散乱によって試料内で多くの相互作用をすることなく放出される BSE の影響が強くなるためである。このような条件は、Forward Scattered Electron (FSE)と呼ばれることもあり、先述した LLE も原理的には同じ電子である。一次電子が垂直入射した際に LLE を検出するか、あるいは FSE を検出することで、BSE でも試料最表面の情報を得ることができる。最新の SEM ではエネルギーフィルターを搭載した BSE 検出器が搭載されている。石谷は(Ishitani 2008)、500 eV の C に一次電子を入射したとき、450 eV~500 eV の LLE が生成された試料内深さ(z)を計算したところ 0.5 nm 以下であることを示している。これは図 2.2 で示した一次電子の最大飛程約 7 nm と、次節で述べる SE の脱出深さ約 5 nm よりもはるかに浅い。また、同じ条件の LLE は、横方向(xy)も 0.2 nm 以下の領域から放出されているため、xyz 全ての空間分解能において SE に勝ることになる。

2.2.3. 二次電子の放出

SE に関しては、Seiler(1983)によって 1982 年までの研究が纏められている。

A. SE 収量

SE 収量 δ は、入射した一次電子の個数 n_p と、試料から放出された SE の個数 n_{SE} の比で表される。Baroody(1950)は、以下の手順で δ を理論的に求めている。

$$\delta = \int n(x, E_p) \cdot p(x) dx \quad (2.10)$$

ここで、 $n(x, E_p)$ はエネルギー E_p の一個の一次電子によって表面から深さ x の位置で生成された SE の数で、一個の SE を生成するために必要なエネルギーを ϵ とすると、次式で計算できる。

$$n(x, E_p) = -\frac{1}{\epsilon} \frac{dE_p}{dx} \quad (2.11)$$

ここで、一次電子のエネルギー損失は侵入長に従い一定に減少するとした Whiddington の法則に従い、

$$-\frac{dE_p}{dx} = \frac{a}{E_p} \quad (2.12)$$

とすれば、一次電子の最大透過距離 x_p (\approx 最大飛程)

$$x_p = \frac{E_{p0}^2}{2a} \quad (2.13)$$

を得る。ここで a は試料に固有な定数、 E_{p0} は一次電子が試料に入射したときのエネルギーである。(2.12)(2.13)式の関係を用いると、(2.11)式は、

$$n(x) = \frac{1}{\epsilon} \sqrt{\frac{a}{2}} \frac{1}{\sqrt{x_p - x}} \quad (2.14)$$

となる。次に $p(x)$ は、深さ x の位置で生成された SE が試料表面から放出される確率で、次式で計算できる。

$$p(x) = p(0)e^{-\frac{x}{\lambda}} \quad (2.15)$$

$p(0)$ は極表面で生成された SE が放出される確率で、 λ は SE の平均自由行程である。極端な例で、 E_{p0} が非常に小さい場合、すなわち $x_p \ll \lambda$ を考えると、(2.15)式の $p(x)$ はほとんどが極表面で生成された SE が放出されると考えて良いので、(2.10)(2.11)式から

$$\delta = p(0) \int n(x) dx = p(0) \frac{E_{p0}}{\epsilon} \quad (2.16a)$$

となり、 E_{p0} に比例して増加する。逆に、 E_{p0} が非常に大きい場合、すなわち $x_p \gg \lambda$ を考えると、(2.14)式の x は無視して良く、(2.10)(2.13)(2.15)式から、

$$\delta = \frac{a}{\epsilon E_{p0}} \int_0^{\infty} e^{-\frac{x}{\lambda}} dx = \frac{a\lambda p(0)}{\epsilon E_{p0}} \quad (2.16b)$$

となり、 E_{p0} に反比例して減少する。すなわち、加速電圧と SE 収量の関係は、加速電圧が低いときは SE 収量が増加し、加速電圧が高くなると SE 収量が減少する。その傾向を図 2.6(a)に示す。

(2.10)式を整理すると、

$$\delta = \frac{p(0)}{\epsilon} \sqrt{\frac{a}{2}} \int_0^{x_p} \frac{e^{-\frac{x}{\lambda}}}{\sqrt{x_p - x}} dx \quad (2.17)$$

で表される。ここで、 $y^2 = (x_p - x)/\lambda$ 、 $z^2 = x_p/\lambda$ の変数変換を行うと、

$$\delta = \frac{p(0)}{\epsilon} \cdot \sqrt{2a\lambda} \cdot F(z), \quad F(z) = e^{-z^2} \int_0^z e^{y^2} dy \quad (2.18)$$

が導かれる。 δ が最大値 δ_m を取るのは $d\delta/dE_{p0}$ がゼロとなる条件でこの時の $z=0.92$ となり、(2.13)式から、

$$E_{p0}^m = 0.92\sqrt{2a\lambda} \quad (2.19)$$

となる。最後に δ_m になる一次電子の入射エネルギーを E_{p0}^m とすれば、

$$\frac{\delta}{\delta_m} = \frac{F(z)}{F(0.92)} = 1.85F\left(\frac{E_{p0}}{\sqrt{2a\lambda}}\right) = 1.85F\left(0.92\frac{E_{p0}}{E_{p0}^m}\right) \quad (2.20)$$

が導かれる。この関係は、試料に固有な定数 a や SE の平均自由行程 λ には依存しない普遍的な曲線となる(図 2.6(b))。(2.20)式はかなり単純化されたモデルから導出された理論式なので、実験結果との一致精度は低い。BSE のエネルギー分布の節で参照した Ding らは、SE についてもモンテカルロシミュレーションを実施し、Baroody が示した普遍的な曲線を得ており、実験値にかなり近い結果を示している(Ding *et al.* 2001)。

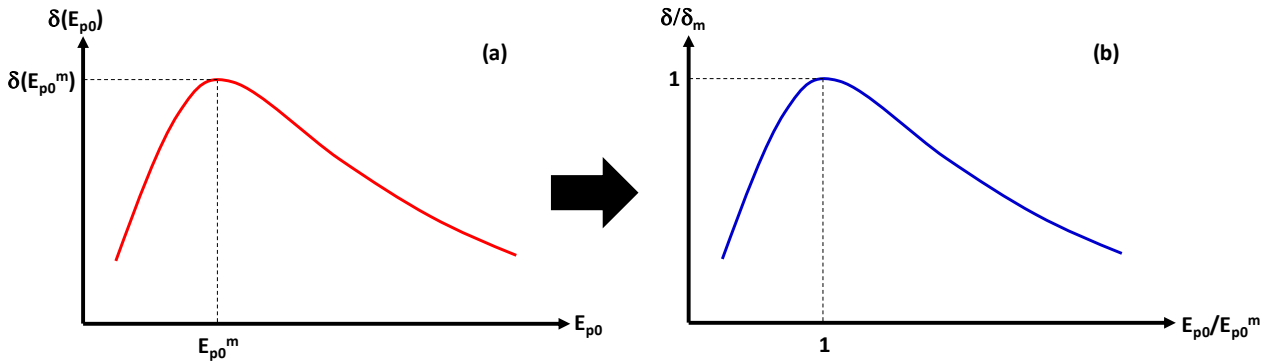


図 2.6 一次電子のエネルギーと SE 収量の関係

SE は、一次電子と BSE による非弾性散乱で励起された電子である。従って、SE 収量 δ は BSE 収量 η を用いて、以下のように表現できる。

$$\delta = \delta_{PE} + \eta\delta_{BSE} = \delta_{PE}(1 + \beta\eta) \quad (2.21)$$

ここで δ_{PE} は SE_1 収量、 $\eta\delta_{PE}$ は SE_2 収量、 β は、BSE による SE 収量と一次電子による SE 収量の比で、1 より大きくなる。これは BSE の方が一次電子よりエネルギーが小さいため、(2.12)式で示したエネルギー損失量が多くなり、より多くの SE を励起することができるためである。一方、一次電子の入射角度が大きくなると β は小さくなる。これは、BSE の角度分布の項で述べたように、弾性散乱によって試料から放出される BSE が増えるために、非弾性散乱による励起電子の数が減るためである。

B. SE の脱出深さ

(2.15)式で示したように、一次電子の非弾性散乱で励起された電子のうち、表面近傍に到達した電子が SE として放出される確率が高い。SE が金属試料内から脱出する最大深さ Λ_{SE} は、Seiler(1983)によって SE の平均自由行程 λ の約 5 倍程度であると示されている。金属に対する λ は 0.5~1.5 nm 程度のため、 Λ_{SE} は約 5 nm となる。一方、絶縁物に対しては、Seiler によって λ は 10~20 nm、 Λ_{SE} は 75 nm と示されており、絶縁物の SE 収量が多くなるのは、 Λ_{SE} が大きくなるためだと説明している。

なお、SE 信号の空間(XY と Z)の分解能は、加速電圧と SE₁ と SE₂ の影響によって決まる。図 2.6 には 10 keV と 0.5 keV の一次電子が C に入射したときの相互作用領域の拡がり、表面から放出された SE₁ と SE₂ の XY 面の SE の放出位置分布を図示してある。SE₁ は一次電子が励起する SE であるから、XY の平面分解能は一次電子のビーム径で決まる。ただし、加速電圧が低くなると、相互作用領域が同程度になるため、XY の平面分解能は一次電子の散乱径で決まる。Z 方向の分解能は、 Λ_{SE} (≈ 5 nm)に等しい。SE₂ は BSE が励起する SE であるから、XY の平面分解能は BSE の拡がりに等しく、Z 方向の分解能は BSE の脱出深さに等しくなる。BSE の脱出深さは 2.2.2 節 B 項に記載した。

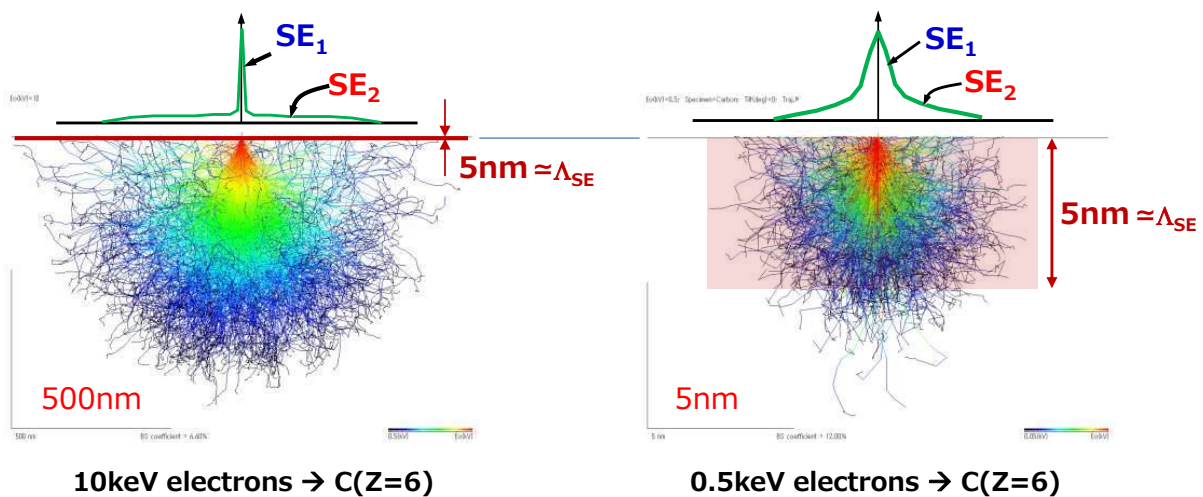


図 2.6 SE の放出位置分布依存性

C. SE のエネルギー分布

SE のエネルギー分布 dN/dE は、Baroody(1950)も議論しているが、現在良く知られているのは、Chung と Everhart によって提案された、

$$\frac{dN}{dE} = k \frac{E - E_F - \phi}{(E - E_F)^4} \quad (2.22)$$

である。ここで k は試料に依存する定数、 E_F はフェルミエネルギー、 ϕ は仕事関数である。第 3 章で説明するが、本研究では軌道シミュレーションを実施する便宜上、Kazemian らの関係(3.1)式を用いた。BSE と同様、Ding らは、先述と同じシミュレーション手法によって SE のエネルギー分布を求めて、Auger 電子分光装置で得られたエネルギー分布と比較し、概ね一致することを示している (Ding and Shimizu 1995, Ding *et al.* 2001)。通常、SEM では SE をエネルギー別に検出しておらず、連続的なエネルギーで放出された全ての SE を検出している。SE の収量は、試料に固有の定数があるとは言え、理論的には試料の原子番号に依存した変

化を見せない。一方、元素だけでなく化合物半導体や絶縁物などの試料の違いによって、SE エネルギースペクトルの形状が変わることが示されている (Joy *et al.* 2004)。従って、SE のエネルギー弁別検出は、試料の様々な情報を抽出できる可能性がある。

D. SE の角度分布

試料から放出された SE の角度分布は、BSE の角度分布と同じく、一次電子が試料に垂直(0°)に入射する場合はコサイン則に従い、第 3 章で示す(3.6)式、(3.7)式で示すことができる。一方、BSE と違うのは、一次電子の入射角度が 60° を超えても、コサイン則を維持することである (Jonker 1951, 1957)。これは一次電子の入射角度に依存せず、SE が等方的に散乱されることに依存するためである。ただし、角度分布は変化しないが、検出できる SE の収量は、一次電子の入射角度が試料に対して水平に近づくほど増えてくる。垂直入射時の SE 収量を $\delta(0)$ 、垂直方向から角度 θ で一次電子が入射したときの SE 収量を $\delta(\theta)$ とすると、

$$\delta(\theta) = \frac{\delta(0)}{\cos \theta} \quad (2.23)$$

となる。これは SE の脱出深さ Λ_{SE} の範囲内で一次電子が通過する距離 L が、垂直入射のときは $L = \Lambda_{SE}$ であるのに対し、角度 θ で入射することによって $L = \Lambda_{SE} / \cos \theta$ となり、その分、非弾性散乱回数が増加するためである。SEM の SE 像がエッジ部分で明るくなる(エッジコントラスト)のはこの現象が反映されている。エッジ効果については次節に述べる。

2.2.4. 走査電子顕微鏡で得られるコントラスト

SEM 画像で得られるコントラストの要因については、(a)元素、(b)試料と検出器の位置関係、(c)試料の凹凸、(d)試料の局所電位と局所磁場、が考えられる。本節ではこれら 4 つのコントラストについて議論する。また最後に、第 4 章での議論のため、電位コントラストの一種とも考えられる半導体の pn 接合部のコントラストについて述べる。

A. 組成コントラスト

図 2.8 に C(Z=6)内に含まれる Pt(Z=78)触媒を加速電圧 2 kV で観察して得られた SE 像と BSE 像を示す。(2.3)(2.7)式によれば、BSE 収量は原子番号の情報が含まれる。(2.17)~(2.20)式によれば、SE 収量は原子番号の依存性がない。そのため、SE 像では後述するエッジ効果による表面の形状を反映したコントラストが観察できる。一方 BSE 像は、Pt 触媒と C を明確に区別して観察できていることが分かる。二つの画像を重ね合わせると、SE 像のどの部分に Pt 触媒が分散しているかを確認できる。

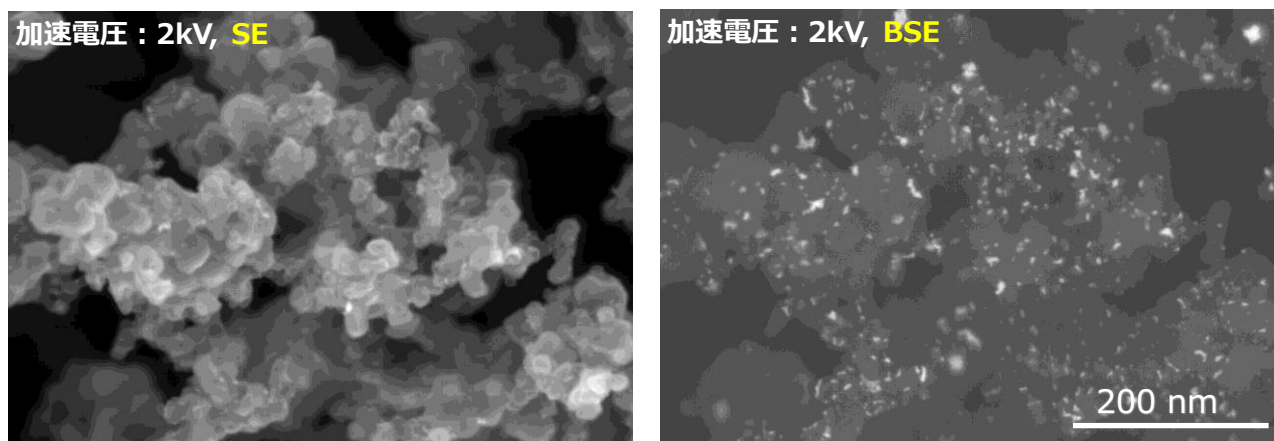


図 2.8 C 上の Pt 触媒による組成コントラスト

B. 陰影効果によるコントラスト

図 2.9(a)に示すように、例えば試料上にピラミッド形状をした観察対象があり、一次電子がピラミッドの左側に照射されたときと、右側に照射されたときで、それぞれ同じ量の SE が放出されたと仮定する。この条件では、右側方向に設置された検出器に到達する SE は、ピラミッドの左側からよりも右側からの SE を多く検出できる。次節や第 3 章でも説明するが、SEM の試料室に設置されている ET 検出器は、Al 膜を蒸着したシンチレータ面に +10 kV のバイアスを印加している。このバイアスによる SE の引き込みが、検出器に近ければ近いほど強くなる。また BSE も同様に、右側の照射点からは検出器を見込めるため BSE は到達するが、左側からの照射点からはピラミッドの試料が壁となって検出器には BSE が到達しない。このような検出器の配置関係で得られるコントラスト差を陰影効果と言う。図 2.9(b)には太陽電池を 1 kV で観察したときの SE 像を示す。太陽電池はピラミッド型の構造をしており、検出器側の傾斜面のみ明るいコントラストが得られていることが明確である。なお、図 2.9(b)の黄色の点線部分は、ピラミッドの傾斜面が検出器側を向いてはいるが、検出器が見込めない、あるいは検出器からの電位の染み出しが弱い(3.2 節参照)に、SE の検出量が減っている部分である。

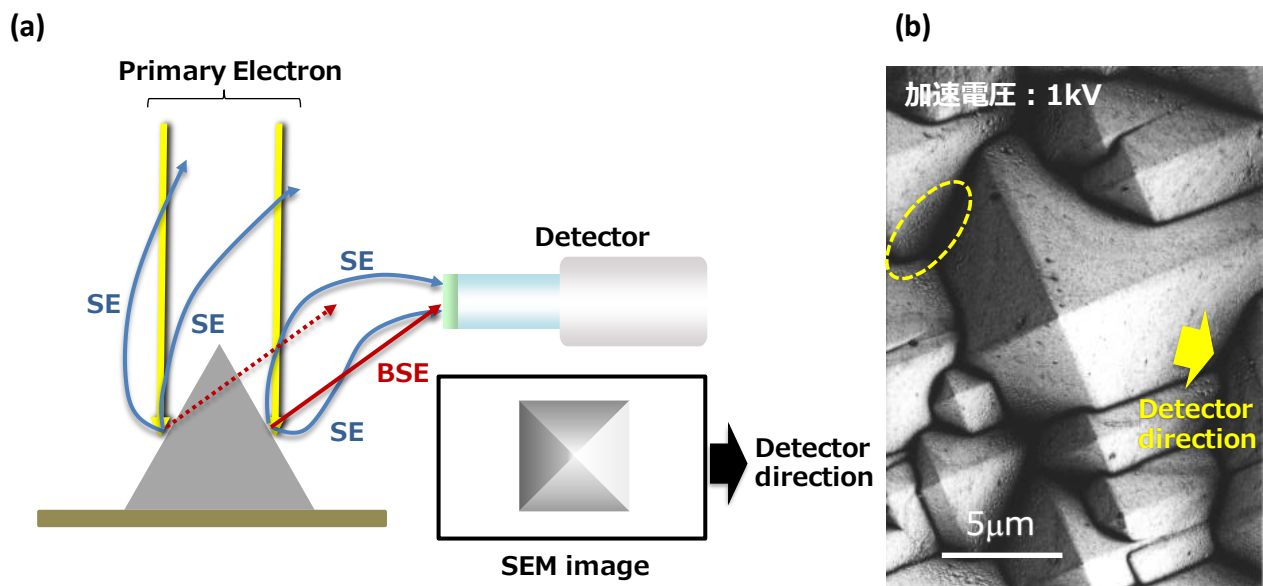


図 2.9 陰影効果の原理説明図と太陽電池の陰影コントラスト

C. エッジ効果によるコントラスト

(2.23)式で示したように、一次電子の試料への入射角度が大きくなると、SE 収量は増加する。図 2.10(a)に示すように、例えば $\theta=60^\circ$ 以上の傾斜のついた凹凸試料を仮定する。平坦部 A から放出される SE 収量と、傾斜部 B から放出される SE 収量は、(2.23)式から傾斜部の方が多い(60° で 2 倍)。また 2.2.2 節 D で述べたように、BSE 収量も、傾斜角度が大きくなると多くなる。そのため、平坦部 C に BSE(FSE)が衝突し、そこから更に SE が放出される可能性がある。もし、検出器が右側方向に配置されているとすれば、平坦部 A よりも平坦部 C からの SE の検出量が多くなり信号強度も大きくなる。図 2.10(b)には、分解能評価用に利用されているグラファイト上に金粒子を蒸着した試料を、加速電圧 1kV で観察した SE 像を示す。この SE 像はカラム内に軸対象に配置された検出器で得られた像のため、前節の検出器配置による陰影効果によるコントラスト差は観察されない。一方、金粒子の結晶面間の境界となるエッジ部分が明るく強調されている。この一次電子が試料傾斜部に入射した際に、傾斜部が平坦部よりも明るくなる現象を、エッジ効果と言う。

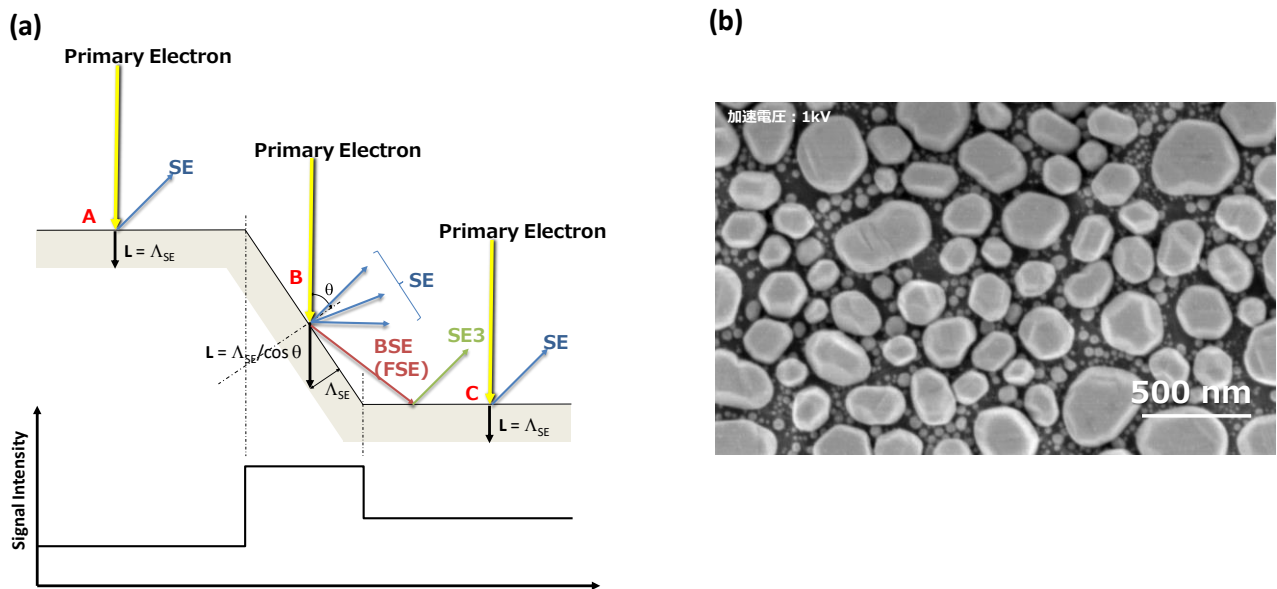


図 2.10 エッジ効果の原理説明図と Au/C のエッジコントラスト

D. 電位コントラスト

絶縁物に一次電子を照射することによって、試料表面が、加速電圧に依存して正、または負に帯電する。図 2.11(a)に一次電子のエネルギーと、放出された全電子収量 $\sigma(=\delta+\eta)$ の関係を示す。 $E_p > E_2$ 、 $E_p < E_1$ では、 σ が <1 となり、入射電子の方が放出電子より多くなるため負に帯電する。 $E_1 < E_p < E_2$ では、 σ が >1 となり、入射電子よりも放出電子の方が多くなるため正に帯電する。試料が負に帯電すると、放出される SE は加速されて、検出器に到達する SE のエネルギー分布は図 2.11(b)に示すように右側にシフトする。一方、試料が正に帯電すると、放出される SE は試料に引き戻され、その結果、検出器に到達する SE が減るため、SE のエネルギー分布は左側にシフトする。絶縁物を観察する場合、帯電の影響を避けるために、通常試料表面に導電性材料を蒸着する。しかし、半導体デバイスのパターン測長用や欠陥評価用の SEM では、測長や欠陥検出結果に影響するため、導電性材料による蒸着はできない。このような SEM では、 E_1 や E_2 に一次電子の照射エネルギーを調整して、試料が帯電しないように調整している。試料表面が帯電しているため、試料周りには、帯電箇所のポテンシャルと周囲の部材とのポテンシャル差によって外部電場が発生している。仮に負帯電して SE が全て試料から放出されたとしても、SEM の検出系によっては、この外部電場によって軌道が変化し、検出器に到達しないことも考えられる。

なお、局所磁場によるコントラスト変化も想定されるが、本論文では割愛する。

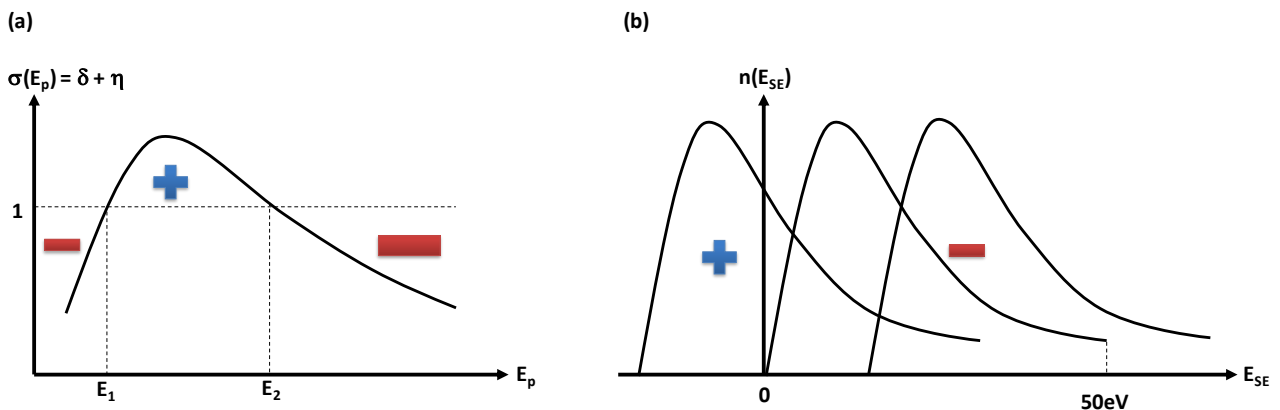


図 2.11 入射電子のエネルギーと全放出電子数の関係と帯電による SE エネルギー分布のシフト

E. pn 接合部のコントラスト

本論文では、第 4 章で 4H-SiC の pn 接合部の観察について述べる。pn 接合部のコントラストは、一般的に p 領域の方が明るく、n 領域の方が暗いと報告されている(例えば Perovic 1995)。また、SE のエネルギー分布は、p 型の分布の方が、n 型の分布よりも高エネルギー側にシフトしていると報告されている(Schönjahn 2002、図 2.11 の“—”標側)。以下、それらの現象について、現在の定説を述べる。

半導体の表面は、ダングリングボンドが局在する不完全な状態であり、それによって、電子移動の起因となる表面準位(ショックレー準位)がバンドギャップ内に存在する。n 型半導体では、表面付近に存在する電子が表面準位に捕獲されることによってフェルミ準位と表面準位が同じエネルギー準位となり、表面近くのバンドは図 2.13(a)のように持ち上がる。p 型半導体では、表面付近に存在する正孔に表面準位から電子が供給されることによってフェルミ準位と表面準位が同じエネルギー準位となり、表面近くのバンドは図 2.13(b)のように持ち下がる(反転層の形成、犬石ら 1992)。この持ち上げ、あるいは持ち下げられたポテンシャルは表面電位 Φ_s と呼ばれる。Perovic (1995)らはこの現象を用いて、SE が表面から放出される際に越える必要がある真空準位(E_{VAC})も影響を受ける、というバンドベンディングモデルを提案した。空乏層よりも深い領域で発生する SE は、真空準位のバンドベンディングにより p 型の方が n 型よりもエネルギー障壁が低くなる。これにより SE 収量は p 型の方が多くなる。また、表面近くで発生する SE は、表面電位 Φ_s が存在するため、p 型半導体では表面に向かって加速され、n 型半導体では押し戻される傾向となる。そのため表面でも SE 収量は p 型の方が n 型よりも多くなると考えられる。

一方、Sealy(2000)らは、p 型半導体、n 型半導体で価電子帯から SE が脱出できるエネルギー E_n と E_p は同じとし、n 領域から真空に放出された電子が p 領域に戻された場合、n 領域の元の放出点に戻るためには、エネルギー保存の関係から qV_{bi} (V_{bi} : pn 接合のビルトインポテンシャル V_{bi})が必要であり、pn 接合部で真空準位 E_{VAC} が qV_{bi} だけ変化すると仮定した。これを Patch Field と呼んでいる。図 2.13(b)に概念図を示す。Sealy らは SEM の検出器位置のポテンシャル E_{SEM} は、 qV_{bi} の半分の位置にあることを導出し、表面から放出された SE が検出されるために越える必要のあるエネルギー障壁は、n 型では p 型よりも $\Delta E_n(=qV_{bi}/2)$ 分だけ大きくなるため、結果的に n 型の SE 放出量は p 型よりも少なくなり、p 型のコントラストが明るくなると考えた。その後 Elliott(2002)らは、Patch Field が存在するならば、pn 接合部に順バイアス電圧を印加し、 qV_{bi} のと同じポテンシャルになると p 型と n 型のコントラストが同じになると仮定し、Si の pn 接合にバイアスを印加して SEM 像を観察した。Elliott らが用いた p 型、n 型 Si のキャリア濃度は $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ であるから、 qV_{bi} は 1.02 V となる。しかしコントラストが同じになるバイアス電圧は 0.75 V となり、0.25 V(ΔV)の差分が観察された。そこで Elliott らは、Patch Field が $q(V_{bi} - \Delta V)$ となるモデルに改良した。Schönjahn(2002)らは、Sealy らの Patch Field のモデルをベースに、p 型と n 型の SE エネルギースペクトルがシフトするモデルを提案した。図 2.13 に原理モデル図を示す。pn 接合部をエネルギー準位ではなく電位で図示すると図 2.13(a)のようになる。p 型の方が n 型よりも電位が低いので、放出される SE のエネルギースペクトルはエネルギーが高い方にシフトし(図 2.11(b)で述べた現象)、その差は qV_{bi} となる(図 2.13(b))。Schönjahn(2002)らは、Elliott らが提案した Patch Field の補正モデルの検証には至らなかったが、その後 Kazemian(2007)らが、Patch Field の補正モデルを検証した。Kazemian らは、旧 FEI 社(現 Thermo Fisher Science 社)の SEM(XL30S)が持っている SE のハイパスフィルタ検出系(バランスフィールドにより偏向電圧を調整する)を用いた。彼らは、SE のエネルギー分布と角度分布(アクセプタンス)を初めて考慮してシミュレーションを実施し、偏向電圧と検出できる SE エネルギーの関係を較正した。その後、p 型、n 型のキャリア濃度が $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の Si を用いて偏向電圧を変えて SE の信号強度を測定し、較正した偏向電圧と SE エネルギーの関係から pn 接合面の

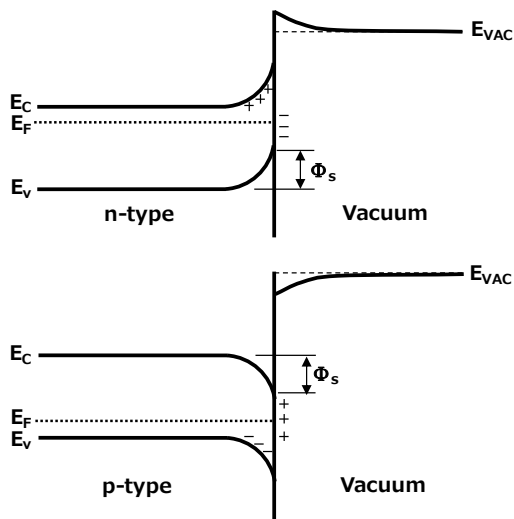
表面電位の差が 0.81V になることを実験的に導きだした。Elliott の提案に従うと 0.77 V となるため、実験的に良い一致を示したと結論付けている。

他方、El-Gomati(2005)らは、Perovic らの考えが、超高真空条件で、清浄表面が得られていることが前提であれば正しいとしながらも、実際の SEM 観察では表面に酸化層やカーボンコンタミネーション(例えば Hren 1979)が形成されていることを前提に、図 2.12(c)で示す新しい SE 放出モデルを提案した。表面層を形成する金属と半導体の接合面は、金属の仕事関数 Φ_{metal} と半導体の仕事関数 Φ_{semi} の差によって(仕事関数は、真空準位 E_{VAC} とフェルミ準位 E_{F} のエネルギー差で示される)、ショットキー接合かオーミック接合かが決まる。図 2.12(c)は $\Phi_{\text{metal}} > \Phi_{\text{semi}}$ の条件である。n 型半導体と金属の接合の場合、エネルギー準位が高い n 型半導体の伝導帯に存在する多数キャリアの電子が金属側に移動し、最終的にはフェルミ準位が一致する。接合面近くのドナー準位はイオン化しているため正の空間電荷層を形成し、 E_{c} のエネルギー準位は持ち上がる。これが障壁となり電子は n 型半導体側から金属へ移動できない。この障壁をショットキー障壁と呼び、 $\Phi_{\text{metal}} > \Phi_{\text{semi}}$ の条件での n 型半導体と金属の接合はショットキー接合となる。一方、p 型半導体と金属の接合の場合、フェルミ準位が一致しても多数キャリアの正孔の移動を妨げる障壁は発生しない。そのため、 $\Phi_{\text{metal}} > \Phi_{\text{semi}}$ の条件での p 型半導体と金属の接合はオーミック接合となる。このモデルに従うと、価電子帯から放出される SE のエネルギー障壁は p 型の方が図 2.12(c)に示すように低くなる。これにより SE 収量は p 型の方が多く、得られる SEM 画像は p 型のほうが明るくなる。El-Gomati らは提案したモデルの妥当性を検証するため、Si の pn 接合部の観察を、超高真空チャンバーを有する Auger 電子分光装置に入れて観察した。試料挿入後のそのままの Si の Auger スペクトルを取得し、C と O が存在することを確認し、SEM 画像も p 型の方が明るくなることを確認した。次に超高真空チャンバー内で Si 表面を Xe イオンビームでスパッタし、Auger スペクトルで C と O が除去できたことを確認して SEM 画像を取得すると、コントラスト差は少なくなったものの p 型の方が明るいことを確認した(すなわち、Perovic らが提案したモデルが正しいことを検証した)。次に同じ超高真空チャンバー内で、Si の Φ_{Si} (4.85 eV)よりも、仕事関数が小さい Cr(Φ_{Cr} : 4.5 eV)を 3.5 nm 堆積させた。図 2.12(c)には図示していないが、この場合は n-Si がオーミック接合、p-Si がショットキー接合となる。n-SiC では Cr から n-Si の伝導帯に電子が移動して蓄積されるため、放出される SE のエネルギー障壁は n 型の方が低くなる。これにより SE 収量は n 型の方が多く、得られる SEM 画像 n 型のほうが明るくなるはずである。結果、n 型の方が p 型よりも明るい SEM 画像が得られ、提案しているモデルは最も SE 放出メカニズムを説明していると結論付けている。ただし El-Gomati らは、SE のエネルギースペクトルは n 型の方が高エネルギー側にシフトする現象について説明していない。しかし El-Gomati グループの Walker(2008)らは、以下の理由により Patch Field の考え方を否定している。

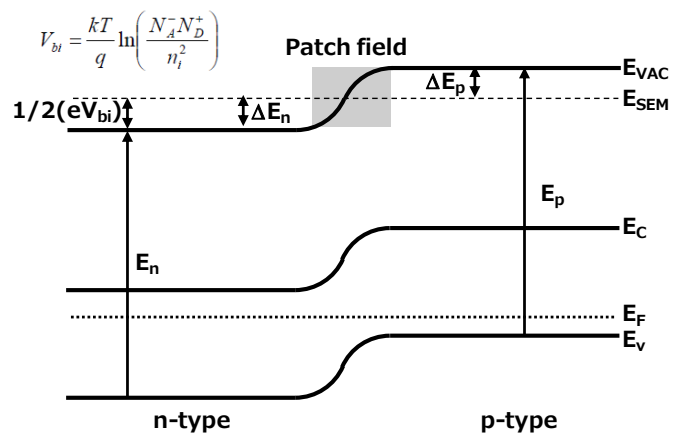
- (a) もし、Si 表面に金属膜が堆積したら、表面に Patch Field は出現しないはずだが、それでも pn 接合部のコントラストは観察できている。
- (b) 表面に Patch Field があると、pn 接合部付近から放出される SE は、Patch Field によって SE の軌道を曲げられてしまうので、pn 接合部の SEM 画像はボケることが予想されるが、実際は p と n は明確に分離できている。
- (c) 例えば 2eV などの極低加速で一次電子を Si に照射すると、一次電子が強く偏向作用を受けて画像が歪むはずだが、そのような現象は観察されない。
- (d) Sealy らの原理の大前提は E_{n} と E_{p} が等しいことであるが、そうではないという報告がある(Wanger and Spicer 1972, 1974)。

(d)については Elliot らの ΔV の補正に関係することが想定されるが、それを加味しても上記の理由は尤もらしく、El-Gomati らが提案しているモデルが、SE 放出、pn 接合部のコントラスト生成メカニズムを最も良く説明していると考えられる。しかし El-Gomati らも SEM の走査速度によってコントラストが出現したり消えたりすることもあれば、一次電子のドーズ量や加速電圧によってコントラストが反転することもあることを示しており、それらの明確な説明には至っていない。pn 接合部の SEM 像コントラストは現在でも議論が続いている研究テーマである(例えば Chee 2016、Chee and Boden 2016)。なお、観察する pn 接合部の周辺には必ず絶縁材料が含まれるため SEM 観察に付きまとう帯電の問題がある(2.2.3 節、詳しくは Cazuax(1999)参照)。また、加速電圧が変わると一次電子の浸入深さも変化する。更に、第 3 章で述べるアクセプタンスの影響で検出できる SE のエネルギー範囲も変化する。従って、El-Gomati らが示したコントラスト出現や反転はこれらの影響にも依存していると考えるべきで、提案されているモデルだけで pn 接合部のコントラスト生成メカニズムを全て説明するのは困難である。

(a) Provic *et al.* (1995)



(b) Sealy *et al.* (2000)



(c) El-Gomati *et al.* (2005)

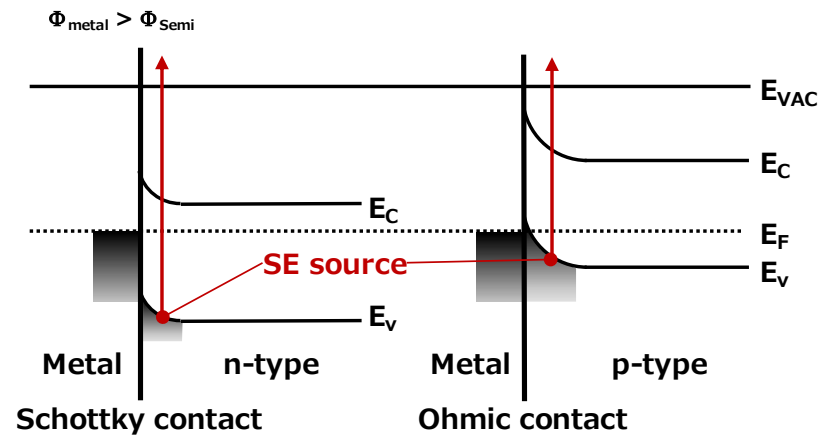
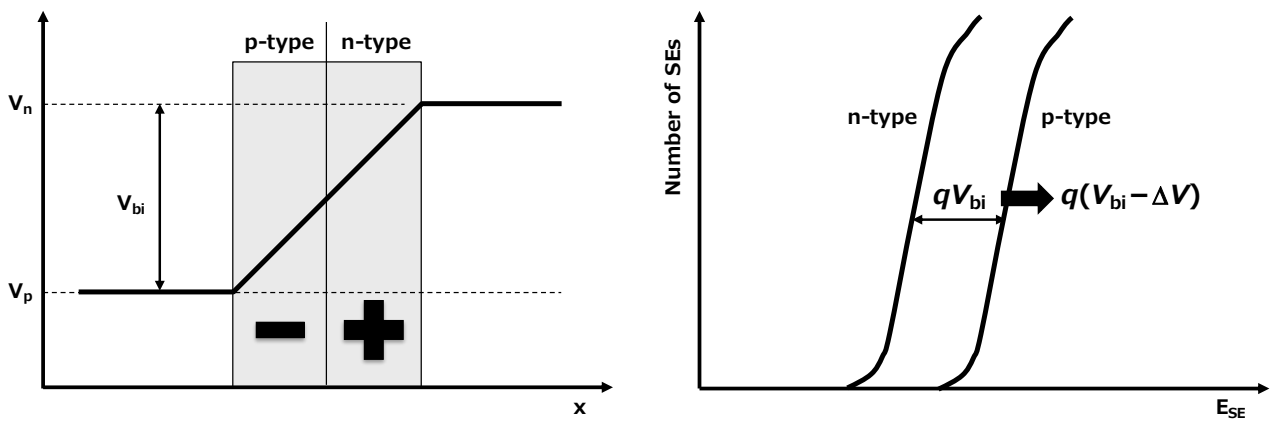


図 2.12 pn 接合の SE 放出、コントラスト形成モデル



(a) pn接合の電位分布

(b) p形とn形のSEエネルギースペクトルモデル

図 2.13 Schönjahn(2002)ら p 型と n 型半導体の SE エネルギースペクトルモデル

2.2.5. 走査電子顕微鏡の検出器

SEM に搭載されている検出器は、ET 検出器、マイクロチャンネルプレート (Micro Channel Plate, MCP)、半導体検出器の三つがほとんどを占める。本節では、これら三つの検出器について説明する。なお、検出器の特性については、3.A.1 節にも詳細を記載する。

A. ET 検出器

ET 検出器は、シンチレータ、ライトガイド、PMT で構成される検出器である (Everhart-Thornley, 1960)。その構成を図 2.14 に示す。最近では、大型な PMT に変わって、アバランシェフォトダイオードアレイで構成される SiPM 素子を使って検出器ユニットが小型化されている例もある。Everhart と Thornley がこの検出器を開発した当時はプラスチックシンチレータが採用されたが、電子線照射によるダメージがあるため、現在は P47 ($\text{Y}_2\text{SiO}_5; \text{Ce}^{3+}$) が採用されている。P47 の平均発光波長は 415 nm (3 eV の光子)、発光した光の減衰時間は 80 nsec であり、この減衰時間が ET 検出器の応答時間を左右する。シンチレータの減衰時間は、3.A 節で説明する一次電子が画像の 1 ピクセルに滞在する時間よりも短いことが望まれる。P47 は絶縁体のため、表面を厚さ 80 nm の Al でコーティングし、この表面に +10 kV のバイアス電圧を印加する (詳細は 3.2 節参照)。P47 に 10 keV の電子が入射した際、そのエネルギーが光子に変換できる割合 (シンチレーション効率) は 7.7% である。従って、シンチレータ内部では約 270 ($=10000/3 \times 7.7\%$) の光子が生成される。ライトガイドは、紫外光を吸収しないアクリルか、あるいは石英ガラスを用いる。アクリルの 415 nm の光子に対する屈折率は 1.49 のため、全反射角は 42° と計算できる。シンチレータ内の発生点から出射した光子が、全反射角より大きな角度でライトガイドと真空の境界に到達すると、真空に脱出する。そのため、PMT の光陰極面に到達する光子数は、全反射角を見込む立体角で決まり、270 個の光子のうち 33% の約 89 個となる。光陰極面では、光子が電子に変換され、その変換効率は量子効率と呼ばれ、415 nm の発光波長にあった PMT を選択すると 25% となる。そのため、最終的に光陰極面から放出される電子数は約 22 個となる。光陰極面から放出された電子は、10 段構成 (PMT によって変わる) のダイノード (二次電子放出材) の初段に誘導される。各ダイノードでは一個の電子の入射に対して、バイアス電圧に応じて 2 個以上の二次電子が放出されるから、10 段目のダイノードからは、 $10^5 \sim 10^6$ の電子が放出される。これによって、pA オーダーで入射した電子の信号は μA オーダーとなり、後段のアンプで十分増倍可能な電圧値に変換できる。

ET 検出器の利点は、電子を光に変換することで、PMT を含む後段の電気回路を大気に設置できることである。また、入射する電子のエネルギーが十分であれば (3.A 節で説明する 8 keV 以上)、一個の電子の入射に対して、一個の電圧パルスが出力される、検出効率 100% の検出器である。一方、ET 検出器のエネルギー分解能は、初段のシンチレータで発生する光子数に依存する。シンチレータで発生する光子数は 270 個と少なく、ガウス分布を仮定した場合、エネルギー分解能の指標となる FWHM は 38.6 個 (標準偏差 $\sqrt{270}$ の 2.35 倍) である。これらからエネルギー分解能は 14.3% ($39/270$) で表され、+8 kV の電子線の入射に対しては、 $8 \text{ kV} \times 14.3\% = 1144 \text{ eV}$ となる。

なお、対物レンズの下に配置される Robinson 検出器 (Robinson 1974) も ET 検出器の構成と同じであるが、シンチレータは P47 とは違い YAG ($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) である。P47 は粉を溶液と混合してガラス基板上に沈殿させるのに対し、YAG は黄の透明色をした単結晶である。YAG の発光強度は P47 の半分だが、減衰時間は 65 nsec と若干高速である。発光波長は 550 nm となるため、YAG の波長にあった PMT を選択する必要がある。Robinson 検出器は、BSE を検出することを目的としており、+10 kV のバイアス電圧は印加しない。結果と

して、一次電子が通過する軸上に配置することが可能となる。

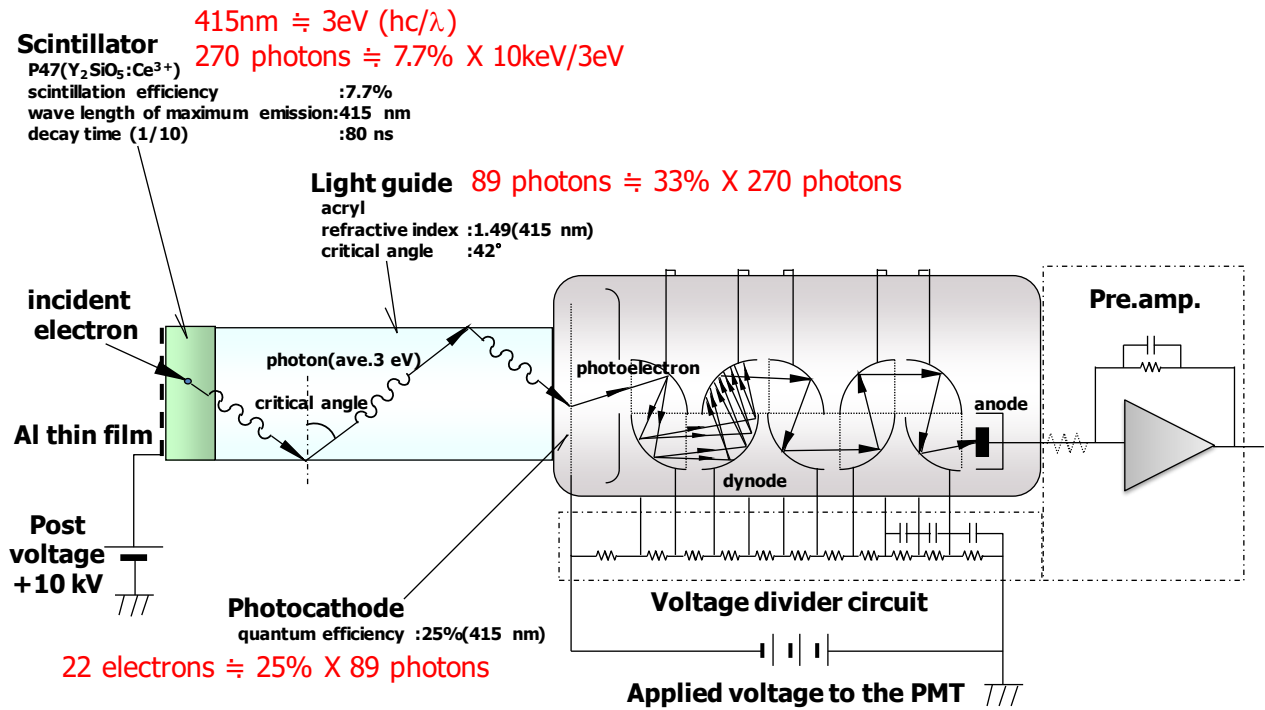


図 2.14 ET 検出器の構成と検出原理

B. マイクロチャンネルプレート

MCP は、ガラスで製作されたキャピラリーアレイである。図 2.15 に MCP の動作原理図を示す。

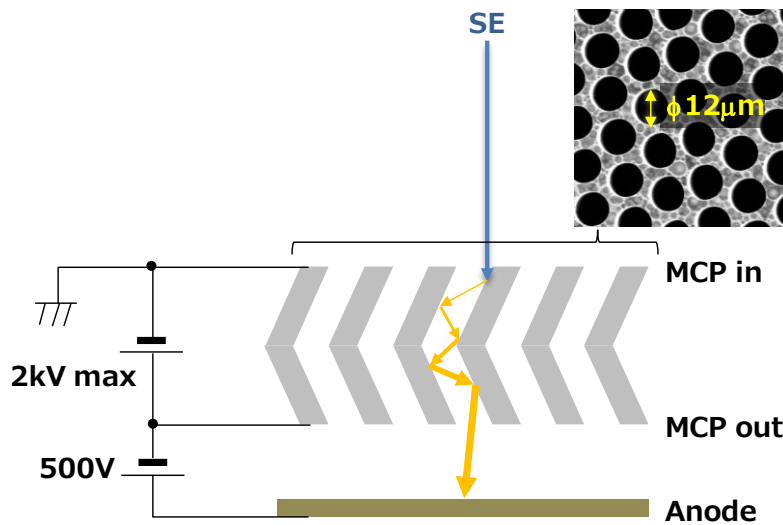


図 2.15 MCP の動作原理図と入り口開口部の SEM 像

MCP in と MCP out の間に最大+2 kV、MCP out と Anode の間に最大+500 V のバイアス電圧が印加される。Anode 側が接地電位ではないので、Anode の出力はフローティングアンプを用いる。SE が MCP in 側に入射すると、PMT のダイノードと同じ原理で、MCP out に向けて二次電子放出をカスケード式に繰り返し、 10^6 まで増幅される。MCP の利点は、50 eV 以下の SE のエネルギーにも感度があること、また応答速度が 1nsec 以下と非常に速いことである。また、MCP のアノードは複数に分割できる。従って半導体検出器で実現できている同軸方向や円周方向にアノードを分割することによって、角度弁別や陰影画像の取得も可能となる。

一方、MCP の最大の欠点は、キャピラリー構造のため、MCP in に不感領域が存在することである(開口率 α で指定されている(図 2.15 の SEM 像))。MCP に n_{SE} 個の SE(あるいは BSE)が到達した時点で、 $n_{SE} \times \alpha$ の SE しか検出できない。通常、開口率は 60%であるが、この弱点を克服するため、ファネルタイプという開口率 90%の MCP も販売されている。

MCP の電子検出に対するエネルギー感度が最大となるのは 300~800 eV である。ET 検出器(シンチレータ)はこの範囲で感度がなく、半導体検出器は感度が低い(3.4.1 節に詳細を説明する)。従って、MCP は 1 kV 以下の加速電圧で BSE(あるいは第 4 章でも述べる SE)を直接検出するには最適な検出器である。

C. 半導体検出器

半導体検出器は、Si フォトダイオードである。検出器の研究は放射線計測分野の方が先行しており、気体(電離箱、比例計数管)、液体(液体シンチレータ)、固体(シンチレータや半導体検出器)と、それぞれの相で検出器を有している。簡素な放射線検出器として使われる電離箱と SSD の動作原理が、その媒体が気体か固体かの違いはあっても同じため、放射線計測分野では、区別するために半導体検出器ではなく固体検出器(Solid-State Detector, SSD)を用いている。図 2.16 に電圧信号発生のための原理図を示す。SSD に入射した BSE は、空乏層領域に到達すると BSE のエネルギーに依存して、電子-正孔対を生成する。空乏層領域で生成された電子-正孔対は、空乏層領域内に存在する内部電界によって、電子は n 型の方へ、正孔は p 型の方に移動する。出力信号はこの作用によって生成される。基本的には、pn 接合部にバイアスを印加しない、あるいは後で述べる空乏層領域を拡げる目的で逆バイアスを印加するため、n 領域と p 領域で電子-正孔対が生成されても、内部電界が存在しない領域では電子や正孔が移動できないため、信号は出力されない。BSE によって生成された電子-正孔対は、内部電界によって拡散するため電流 $i_{in}(t)$ となる。その拡散時間 t は、SSD とプリアンプの時定数 $\tau_f = R_{SSD} \cdot (C_{in} + C_{SSD})$ より遙かに短い。ここで、 R_{SSD} は SSD の抵抗、 C_{SSD} は pn 接合の空乏層が形成されたことにより発生する静電容量、 C_{in} は SSD とプリアンプ間の浮遊容量である。この電流変化は、元は電荷 $q_{in}(t)$ の時間変化と等価であり、最終的に Q_{in} の電荷が蓄積され、プリアンプへの入力電圧は $V_{in} = Q_{in}/(C_{in} + C_{SSD})$ で計算される。後段は、プリアンプの増幅率を $-A$ とすれば、出力電圧 $V_{out} = -AQ_{in}/(C_{in} + C_{SSD})$ となる。ただし、 $A = (C_{in} + C_{SSD} + C_f)/C_f$ を仮定しており、 R_f は帰還抵抗、 C_f は帰還容量である。検出器の応答を早くするためには、時定数(抵抗 R と静電容量 C の積)をできるだけ小さくする必要がある。

(2.6)式から、例えば Si に 0.5 keV の BSE が入射すると、その侵入深さは 10 nm となり非常に浅い。図 2.16 に示す BSE の入射面側の電極層と n 層が、BSE の侵入深さよりも厚い場合は、空乏層まで BSE が到達しないため信号は生成されない。従って、できるだけ低エネルギーの BSE を検出したい場合は、入射面の電極層と n 層を薄くする必要がある。

また、Si フォトダイオードの pn 接合部の静電容量 C_{SSD} は次式で計算できる。

$$C_{SSD} = \sqrt{\frac{q\epsilon N}{2(V_{in} - V)}} \quad (2.24)$$

ここで、 q は素電荷 (1.602×10^{-19} C)、 ϵ は誘電率、 N は少数キャリア濃度、 V_{in} は (4.1) 式で示されるビルトイン電圧、 V は pn 接合部のバイアス電圧である。(2.23) 式から、応答速度に影響する C_{SSD} は、 N を小さくするか、逆バイアス電圧を印加して ($V_{in} - V$) を大きくすることでしか、小さくすることはできない。

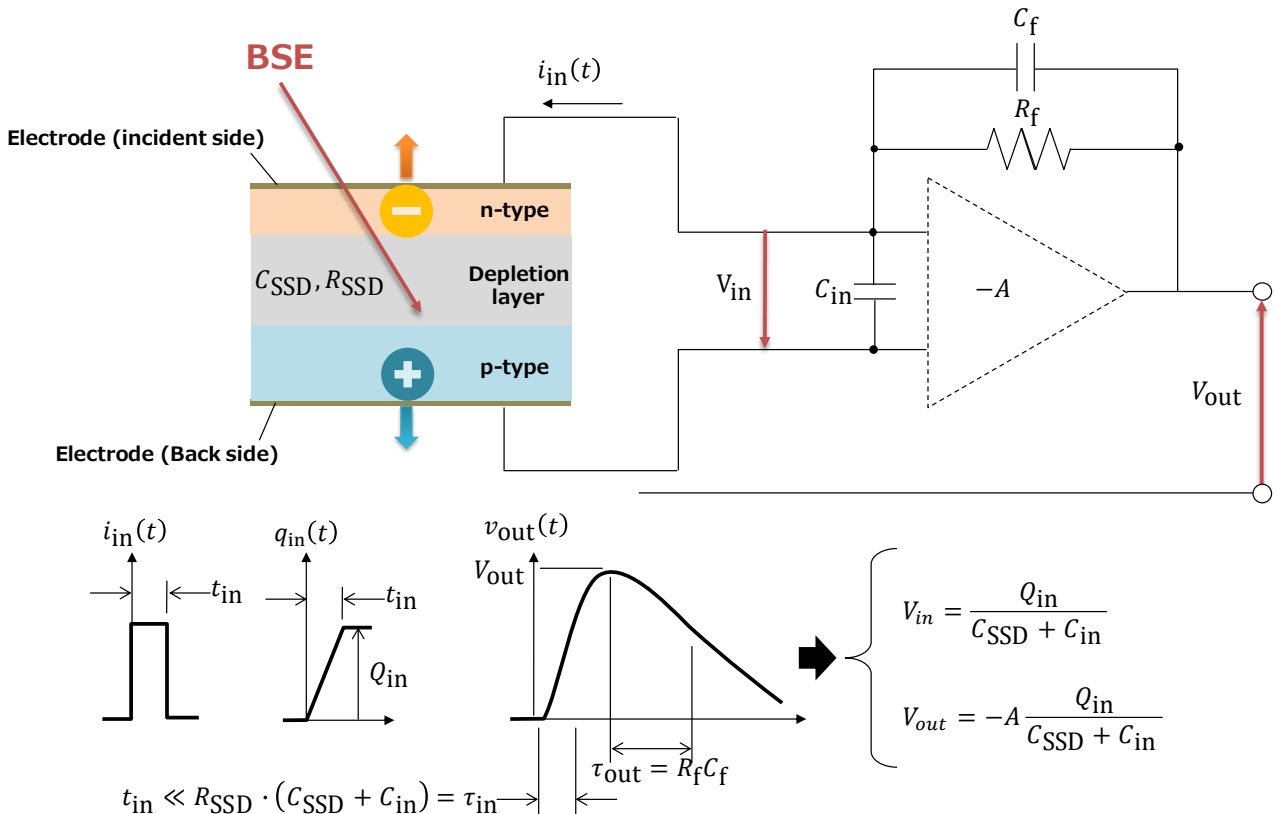


図 2.16 半導体検出器の出力信号電圧の発生

SSD の利点は、1 個の電子—正孔対を生成するために必要なエネルギーは 3.61 eV (イオン化エネルギー) である。すなわち、10 keV の電子が入射すると 2770 個の電子—正孔対が生成される。これは ET 検出器や MCP では実現できない初期ゲインで、また、3.A.1 節で述べるファノ因子の影響もあって (統計分散がポアソン分布で計算できる数値よりも小さくなるために提案された補正因子)、SSD は三つの検出器の中で最も良いエネルギー分解能を示す (例えば、5 keV で 100 eV)。また、SSD は、2 mm 以下の厚さで製作できるため、対物レンズ下面に設置することが可能で、WD を短くして高分解能観察しながら高立体角で BSE 検出するのに適している。また、MCP と同様、同軸方向や円周方向に分割した検出面を形成できるため、WD を変化させなくても、角度弁別や陰影画像の取得が可能である。

SSD の最大の欠点は上記した応答速度である。 C_{SSD} によって、検出器の応答速度は 1 μ sec 以上になっている。また、極力 C_{in} を小さくするため、初段のアンプは検出器の近くに配置する必要がある。すなわち真空内に配置される。また、広いダイナミックレンジを実現するためには、ゲインの切り替えが必要である。そのために、 R_f あるいは C_f を複数個準備し、リレーで切り替えなければならない。この構成によって電子回路基

板が大きくなり、また基板や回路素子部材からのガス放出による試料コンタミネーションの影響も考慮しなければならない。また検出領域を広く取ろうとすれば、 C_{SSD} が増えて応答速度も悪化する。また、ET 検出器のシンチレータと同様、加速電圧が低くなればなるほどエネルギー感度が不足する。エネルギー感度を上げるために、n 層と電極の厚みをできるだけ小さくしたいが、薄くすればするほど表面抵抗が増えるため、応答速度低下の原因となる。

そこで Šakić ら(2010)は、表面の BSE が Al 電極層を通過せずに表面の p+層(ボロン層)に到達できる構造とし、p+層を 2 nm まで薄くした。これによって、0.5 keV の BSE に対するエネルギー感度を対 10 keV 比で 0.6 まで向上した(従来の Si フォトダイオードでは <0.1 以下)。また、プロセスで高抵抗 Si を用いて少数キャリア濃度を制御して空乏層の幅を広げ(C_{SSD} の低減)、高抵抗 Si により抵抗が増えた分は Si 基板を削って抵抗を低減し、かつ Al 電極をおよそ 200 μm 間隔で p+層上にグリッド状(1 μm 幅)に形成した。これによって、Si フォトダイオードを形成している 6.6 mm²の領域で、SSD の R_{SSD} を 100 Ω に、 C_{SSD} を 15 pF に低減した。このとき τ_{in} は実に 1.5 nsec となる。

なお Si フォトダイオードは可視光に感度を持っている。従って、試料室内をモニタするカメラの光源や、CL による光はノイズ信号となることを付記しておく。

2.2.6. 走査電子顕微鏡の検出系

2.2.5 節で説明した検出器は、SEM の試料室やカラム内にそのまま搭載される場合もあれば、その他の要素と組み合わせて配置されることもある。SEM において SE、BSE を検出器まで導く構成(検出器単体も含む)を、本論文では検出系と定義する。以下、試料室内に配置される検出系と、カラム内に配置される検出系に分けて述べる。

A. 試料室内に検出器が配置される検出系

図 2.17 に SEM の試料室内に ET 検出器を配置した構成図を示す。この構成に限り、ET 検出器を Chamber-ET 検出器と呼ぶ。Chamber-ET 検出器は、主に SE を検出する検出器で、シンチレータ表面に印加した電圧(ポスト電圧。通常は+10 kV)が作る電位分布は対物レンズや試料の形状の影響を受け、試料近傍に漏れ出す電位の強さに依存して、検出できる SE のエネルギーや角度情報、収集効率が変化する(詳細は第 3 章に記載)。試料近傍に漏れ出す電位の強さを調整する目的で、Chamber-ET 検出器のシンチレータ面の手前に、グリッドを配置する場合もある(Everhart and Thornley 1960; Konvalina and Müllerová 2006)。

グリッドには、一般的には 0 ~ +500 V が印加される。一方、試料から放出された BSE は、対物レンズ下面や試料室内壁に衝突すると三次電子(Tertiary Electron, TE or SE₃)が放出され、Chamber-ET 検出器に到達することもある。従って SE₃ を検出すると BSE の情報を得ることができる。ただし、SE も検出されるため、得られる信号は SE と BSE が混合する(図 2.17(a))。また、グリッドに負電圧を印加すると SE はグリッドで追い返されてシンチレータには到達しないため、試料からシンチレータを直接見込める場合は、BSE のみ検出することも可能である(図 2.17(b))。また、一部の BSE は、直接 Chamber-ET 検出器に到達する。Chamber-ET 検出器を配置した検出系の詳細は第 3 章で議論する。

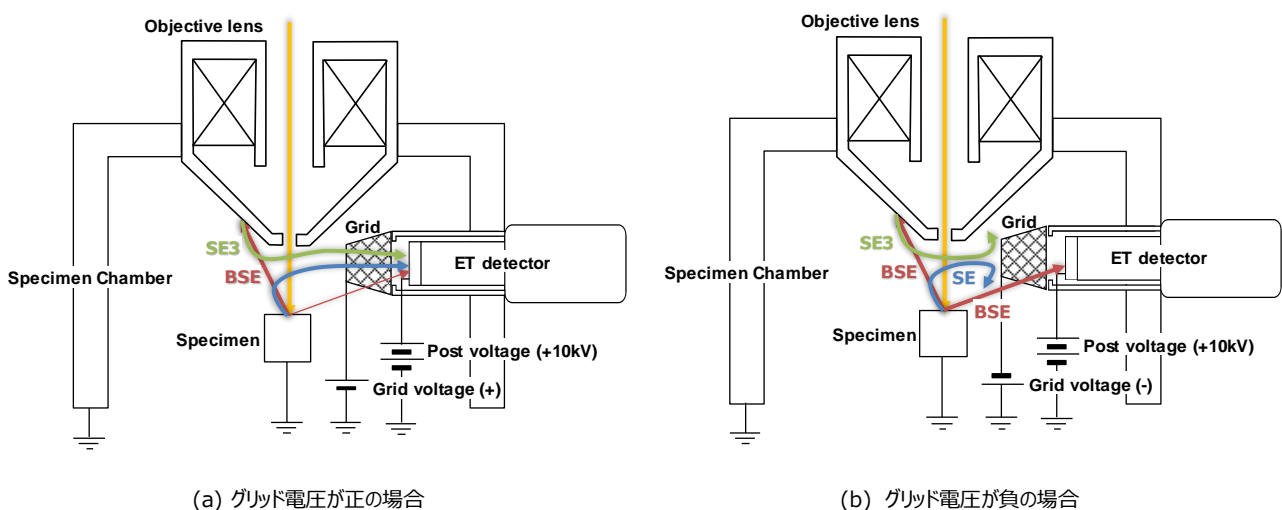


図 2.17 ET 検出器の試料室内の配置構成

UTL 検出器は、図 2.18 のように(a)SSD、(b)Robbinson 検出器を、対物レンズ直下に配置する検出器である。MCP を配置することもできるが、現在の市販の SEM では適用されていない。UTL 検出器は、検出面にバイアスを印加しないため、BSE のみ検出する。従って BSE は放出時のエネルギーで検出器に衝突するため、適用する検出器によって検出できる最低エネルギー(エネルギー感度)が違う(2.2.5 節)。

WD を上下させると、UTL 検出器に衝突する BSE の検出角度範囲を変化させることができる。また、SSD の場合は、同軸方向に分割した検出面を形成できるため、WD を変えなくても検出角度範囲を変化させることができ、また、WD の変化と組み合わせれば、より任意の角度を選択することができる (Aoyama *et al.* 2011)。

Robbinson 検出器の場合は、光を試料室外に効率的に誘導するために、シンチレータが SSD に比べて厚い。そのため、短い WD での観察には適さない。シンチレータで発生した光を効率よく PMT に導くために、ライトガイドの形状を検討した報告もある (Schauer and Autrata 1992)。UTL 検出器を配置した検出系の詳細は第 3 章で議論する。

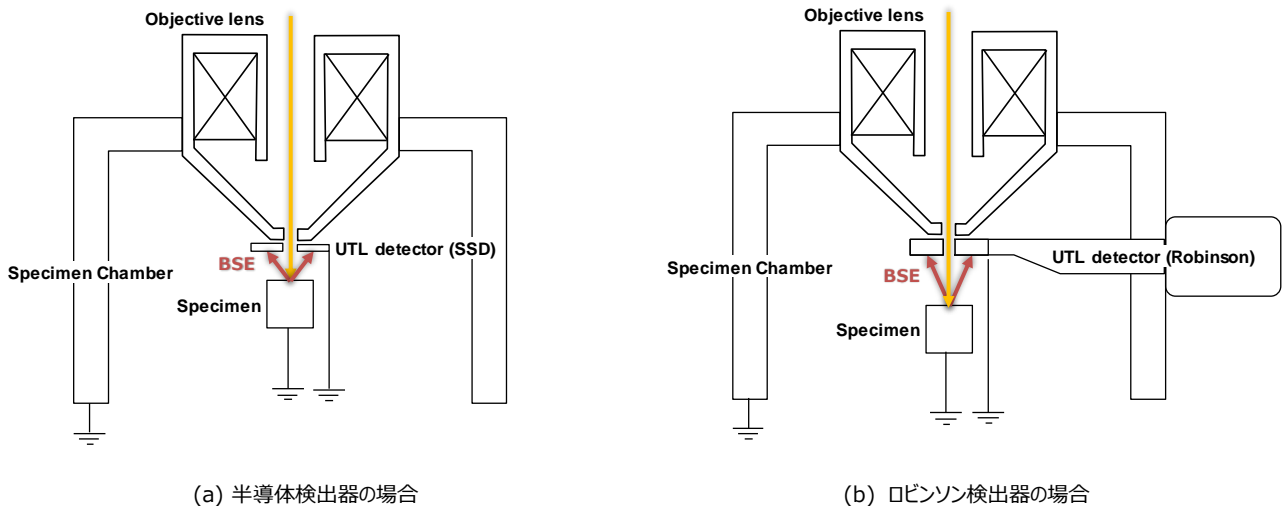


図 2.18 UTL 検出器の試料室内の配置構成

B. カラム内に検出器が配置される検出系

対物レンズ内や対物レンズ上部に設置された検出器を In-Lens 検出器、あるいは TTL 検出器と呼んでいる。本論文では以降、TTL 検出器で統一する。この TTL 検出器を適用し、電極やフィルターなどと組み合わせ、SE/BSE の検出を実現した系が TTL 検出系である。図 2.19 にブースター光学系に採用されている TTL 検出系の一例を示す。ライナー電極に +8 kV を印加しており、対物レンズ上部に設置された ET 検出器のシンチレータ表面は、+8 kV と同電位となる。ライトガイドが絶縁体のため、GND 電位との縁面距離も十分保つ構造が実現できる。試料から放出された SE や BSE は 8 keV 以上のエネルギーでシンチレータに衝突するため、十分な光を生成できる。図 2.19(a)では、SE、BSE とともに ET 検出器に入射するため、SE と BSE の信号が混合する。一方、図 2.19(b)では、シンチレータに SE や BSE が入射する前段にエネルギーフィルターを搭載しており、SE、あるいはエネルギーの低い BSE が検出できない系となっている。図 1.1 は、図 2.19(a) と (b) の検出器を、軸方向にずらして配置した例である。この検出手法は SE や BSE を直接検出しており、3.A.1 節で述べるように、SNR (Signal-to-Noise Ratio; 信号対雑音比) が良くなる検出系である。ブースター光学系に TTL 検出器を配置した検出系の詳細は第 3 章で議論する。

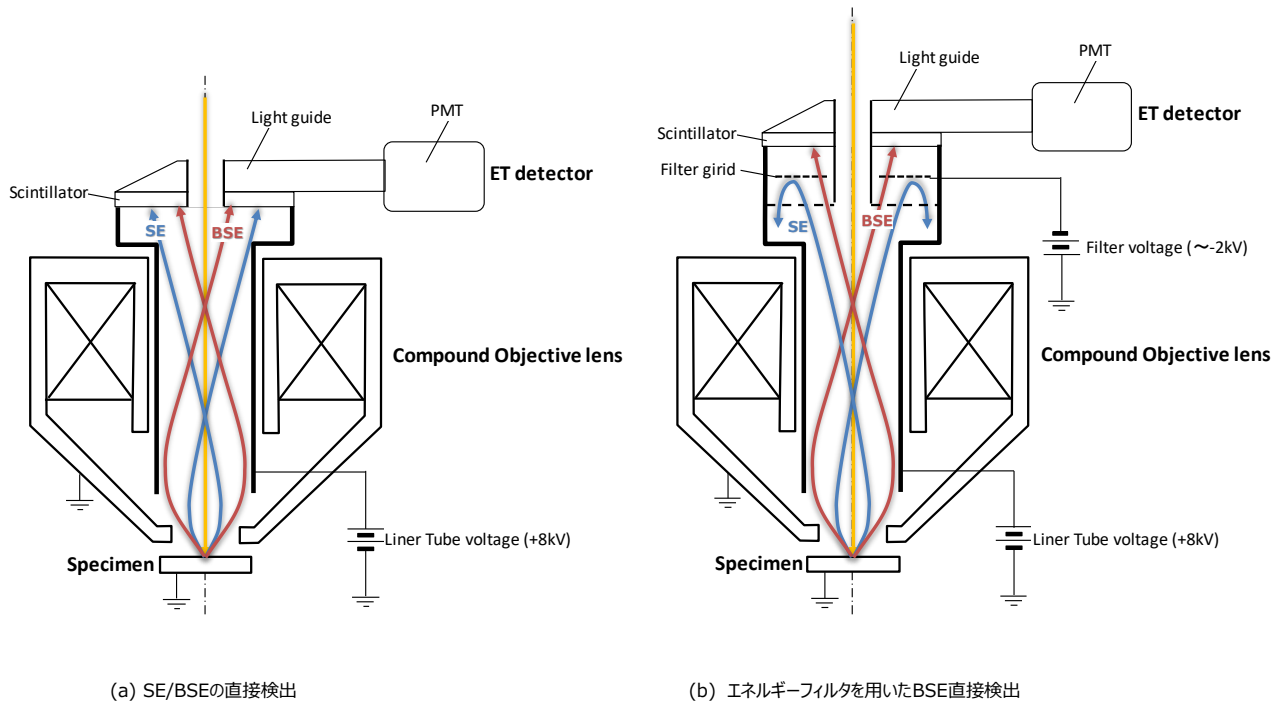


図 2.19 ブースター光学系の SE/BSE 検出系

図 2.20 にウィーンフィルターを採用した SE/BSE 検出系の一例を示す。また、ウィーンフィルターによる SE の偏向原理を図 2.21 に示す。 $+V/2$ と $-V/2$ の電圧を印加した電極が対向して配置され、 $+V/2$ 側は SE が通過できるようにグリッド電極となっている。この印加電圧が作る電場によって、一次電子も SE もグリッド電極の方に軌道が曲がる。このときの PE の偏向角度を θ_e とする(図 2.21(a))。次に、紙面奥の方向に磁場ベクトルを発生させる。この条件では、一次電子は左方向に、SE は右方向に軌道が曲がる。このときの一次電子の偏向角度を θ_b とする(図 2.21(b))。電場でも磁場でも、エネルギーの低い SE の方が一次電子よりも曲がる角度が大きい。これら電場と磁場の作用を同時に発生させ、磁場 B を $\theta_e = \theta_b$ となるように調整すると、PE は試料に向かって直線で進み、SE はグリッド電極側に大きく曲がる。これがウィーンフィルターの原理を用いた SE の偏向方法で、EXB フィルターと呼ばれている。もともとウィーンフィルターは 1.1 節で述べたようにモノクロメータに適用されていることから、一次電子にエネルギー分散を発生させることが EXB フィルターの課題である。

図 2.20(a)は、対物レンズ内に配置された制御電極に正の電圧を印加しており、試料から放出された SE は、ウィーンフィルターの方向に効率良く導かれる。SE はウィーンフィルターによって軌道がグリッド電極方向に曲げられ、電極通過後に ET 検出器によって検出される。ET 検出器のシンチレータに印加されたポスト電圧 $+10\text{kV}$ による電場は、グリッド電極があることによって、一次電子の軌道に影響しない。一方 BSE はウィーンフィルターの影響を受けず、上部に設置された変換板に衝突し、 SE_3 を発生させる。 SE_3 はエネルギーが低いいため、磁場よりも電場の作用の方が大きく、その結果グリッド電極の方向に導かれ、ET 検出器で検出される。この変換板を用いた手法は、図 2.19 で説明した直接検出と比較すると、SNR は悪い(3.A.1 節参照)。図 2.20 は一例であるが、図 2.21 で示すような半導体検出器を変換板の代わりに配置すれば、直接検出方式を実現できる。

図 2.20(b)は、制御電極に負電圧を印加した例である。例えば -50 V とすれば、試料から放出された SE は対物レンズ上部には導かれない。従って、BSE だけを検出することができる。この負電圧を制御することに

よって、SE の検出量を調整し、SE と BSE の混合比を変化させることができる。

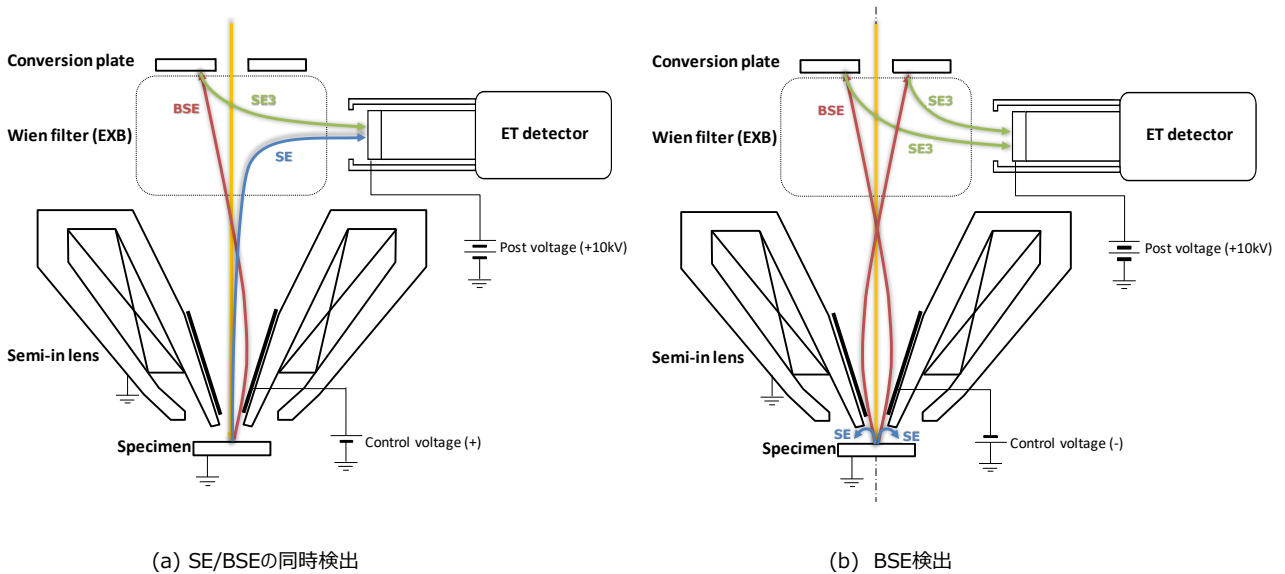


図 2.20 ウィーンフィルターを採用した SE/BSE 検出系

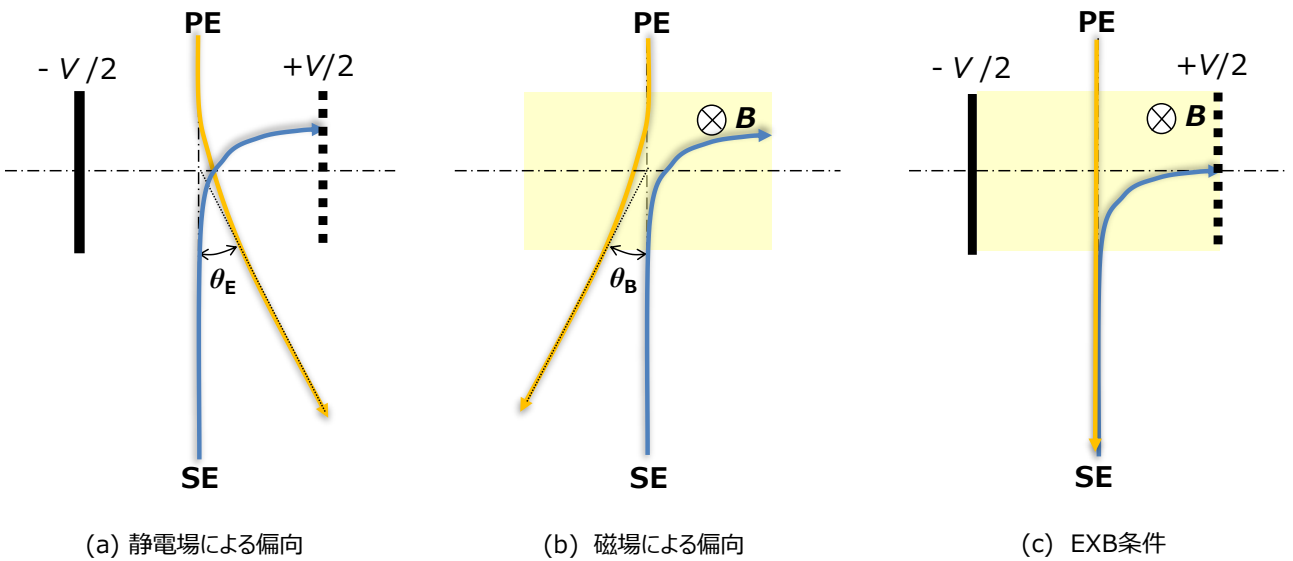


図 2.21 ウィーンフィルターの原理

図 2.22 にバランスフィールドを採用した SE/BSE 検出系の一例を示す。バランスフィールドは、図 2.20 のような磁場と電場の組み合わせで SE の軌道を曲げる方式ではなく、電場だけで SE の軌道を曲げる方式である。原理図を図 2.20(b) に示す。同じ長さ、電極間距離に配置された対向電極を 3 組、軸方向に配置する。上下の電極には、 $-V/2$ 、 $+V/2$ の電圧を印加し、真ん中の電極には、極性を変えて $+V$ 、 $-V$ の電圧を印加する。一次電子は、上の電極で θ_E 偏向され、真ん中の電極で $2\theta_E$ 振り戻され、下の電極で θ_E 偏向されることで、軌道が軸上に戻り、試料に垂直に入射させることができる。一次電子を曲げると偏向収差が発生するが、電極の長さや電極間距離が同じのため、上下の電極で発生する偏向収差と真ん中の電極で発生する偏向収差は相

殺される。下の電極の $+V/2$ 側は SE が通過できるようにグリッド電極となっている。試料から放出された SE は、 $+V/2$ によってグリッド電極側に曲げられ、図 2.22(a)に示すように、電極通過後に ET 検出器によって検出される。

制御電極によって、試料から放出された SE は、対物レンズ内に効率良く導かれ、バランスフィールドによって SE は曲げられ、ET 検出器によって検出される。電極に印加する V を調整すると、下電極の $+V/2$ 側に到達する SE のエネルギーが変わるため、SE のエネルギー弁別検出が可能である (Kazemian *et al.* 2007)。一方 BSE は、バランスフィールドの影響を受けず、上部に設置された半導体検出器によって検出される。

バランスフィールドを用いた検出系では、対物レンズ先端部に開口部が必要である。この先端部は一次電子を試料上にフォーカスするために必要な部分で、片方だけに開口部があると軸上に発生する磁場分布が非対称となり、非点収差が大きくなる。そのため、軸対称の反対側にも開口部を設けることがある。

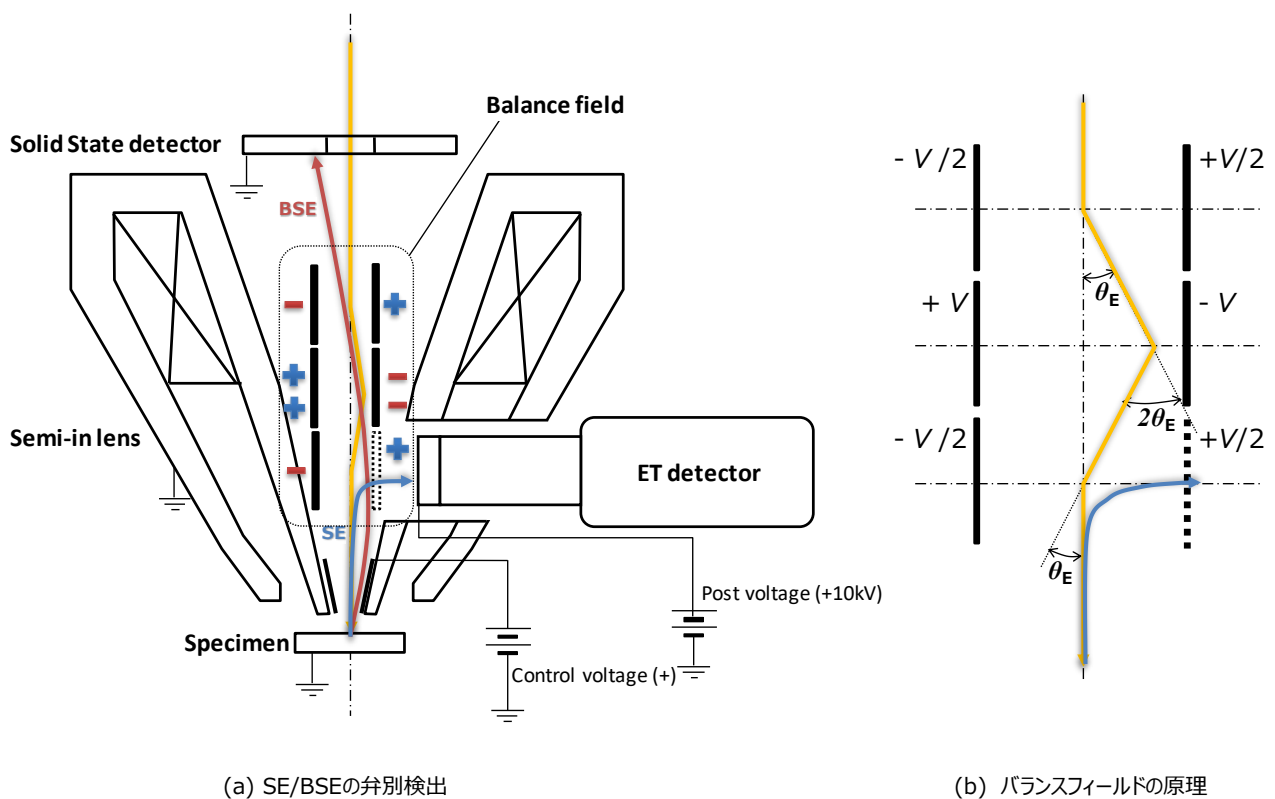


図 2.22 バランスフィールドを採用した SE/BSE 検出系

2.3. 本章のまとめ

本章では、始めに SEM の基本的な原理を示した。次に、一次電子の試料への侵入、試料内の散乱、BSE と SE の放出について説明した。また、SE と BSE の放出では、収量、脱出深さ、エネルギー分布、角度分布に分けて詳細に記載した。次に、SEM で得られる組成、陰影、凹凸、電位コントラストについて説明した。また pn 接合部の観察で得られるコントラストについても、これまでの研究を例に議論した。更に、SEM に搭載されている代表的な検出器である ET 検出器、MCP、SSD について詳細を述べた。最後に SEM の検出系について、試料室内と、カラム内の配置に分けて説明し、カラム内配置では、ウィーンフィルターやバランスフィールドと組み合わせた検出系についても述べた。

以上、SEM の信号検出に関する概論を述べたが、SE や BSE の放出理論に対して、検出系に関しては SEM 製造メーカーによってもばらばらで、検出できる SE や BSE のエネルギーや角度の情報を得ることは難しい。一方、第 1 章で述べたように、SEM のコントラストを理解するためにはアクセプタンスや収集効率を知ることが不可欠である。そこで次章では、検出原理が比較的簡単なブースター光学系を採用した SEM の対物レンズを仮想設計し、TTL 検出器、UTL 検出器、Chamber-ET 検出器をそれぞれ配置し、WD、加速電圧別にアクセプタンスと収集効率をシミュレーションで検証する。

3. 走査電子顕微鏡の検出系評価

3.1. はじめに

第1章で述べたように、SEMは様々な材料の表面形態をnmからmmのスケールで観察できる強力なツールである。1990年代に入るまでは、SEMの対物レンズ磁場が試料上に漏れないアウトレンズタイプの対物レンズが使用されてきた。アウトレンズが使われていた時代は、試料室に搭載されるChamber-ET検出器(Everhart and Thornley 1960)と、対物レンズの直下に配置されるUTL検出器(Robinson 1975)が、代表的なSE、BSE検出器として使われてきた。両検出器とも、シンチレータ、ライトガイド、光電子増倍管で構成されている(図2.14)。またUTL検出器には、半導体検出器も適用されることもあった(Wolf and Everhart 1969)。Chamber-ET検出器では、シンチレータ表面に+10 kVのバイアス電圧を印加し、50 eV以下のエネルギーを持つSEをシンチレータ表面に向けて加速し光を発生させ、十分なエネルギーでシンチレータに衝突させて信号とする。一方でUTL検出器では、バイアス電圧は印加せず、50 eVから一次電子の加速エネルギーまでの広い範囲のエネルギー分布を持つBSEを直接検出器に入射させて信号とする。同じプローブ電流や走査時間の条件でSEM画像のSNRが劣化しないシンチレータへの入射エネルギーは8 kV以上必要である(Agemura *et al.* 2001)。そのため、シンチレータにバイアス電圧を印加しないUTL検出の場合は、一次電子の加速電圧が8 kV以上の条件で使用する必要があり、また、バイアス電圧を印加しないUTL検出器では、SEは原理的に検出できない。一方、Chamber-ET検出器は、試料からシンチレータの表面を見込む立体角分のBSEは原理的に検出できる。Chamber-ET検出器の実際の検出メカニズムは遥かに複雑で(Seiler 1983; Goldstein 2003)、検出できるSEやBSEのエネルギーや角度(Zach and Rose 1986)、SEとBSEの混合比は、得られるSEM像に影響する(Balasubramanyam *et al.* 1995)。それにもかかわらず、Chamber-ET検出器はSE検出器、UTL検出器はBSE検出器として考えられてきた。また、Chamber-ET検出器のSEの収集効率を上げるためには、対物レンズと試料の間の距離WDが長い方向が良く(Konvalina and Müllerová 2006)、アウトレンズSEMでは、WDは5mmより長く設定して使われることが多かった。WDを長くするとレンズ焦点距離が長くなるため、球面収差係数 C_s 、色収差係数 C_c が大きくなり、理論分解能は低下する。特にWDの影響は、色収差が支配的となる低加速電圧では顕著となるため、アウトレンズSEMではもっぱら高加速電圧観察が望ましく、10 kV以上の加速電圧が使用されてきた。

1980年代後半から1990年代前半にかけて、半導体デバイスのノードサイズがサブmmスケールにまで小さくなり、また、デバイスには絶縁材料が含まれることから、帯電の影響を最小限にして、高分解能でSEM画像を得る必要に迫られていた。従って、 C_s や C_c を小さくして分解能を上げるためにWDを短くし、帯電の影響を抑えるために1 kV以下の加速電圧が使用されるようになってきた。焦点距離を短くして C_s や C_c を最小化するために、試料上に対物レンズ磁場を積極的に漏らすことでレンズ主面を試料に近づけるセミインレンズ(Tsuno 1998)、試料に負バイアスを印加するリターディング法(Pease 1967; Paden and Nixon 1968, Munro *et al.* 1988)を用いた電磁界複合レンズ、対物レンズ先端を一次電子が通過する直前まで正バイアスを印加するブースティング法(Frosien *et al.* 1989; Plies *et al.* 1999, Knell and Plies 1999, Yonezawa *et al.* 1999)を用いた電磁界複合対物レンズ、などが最近のSEMでは適用されるようになった(低加速電圧での分解能向上を目的とした対物レンズや検出系の改良については、Müllerová and Lenc (1992)によってまとめられている)。以上のように、WDが短くなり、対物レンズの磁場や電場が試料に影響してくるようになると、SEや

BSEは簡単に対物レンズ内部に導かれるため、従来の Chamber-ET 検出器や UTL 検出器では検出できない。これを克服するため、対物レンズ内、あるいは上部(電子源側)に配置する TTL 検出器が開発された(Tamura and Kimura 1968; Kruit 1991; Jaksch and Martin 1995; Munack *et al.* 1999; Tachibana 2006)。

上記のような歴史と経緯から、最近の SEM は、最低でも TTL 検出器、UTL 検出器、Chamber-ET 検出器の3つの検出器が含まれる。これに伴って、それぞれの検出器で検出できる SE や BSE は混合することになり、また、対物レンズ磁場や電場の影響を受けることで、特に TTL 検出器に到達する SE や BSE の軌道は極めて複雑化してしまう。このため得られる SEM 像のコントラストを説明することが困難になってきている。そこで、日本顕微鏡学会の SEM 物理学分科会では、得られる SEM 像のコントラストを理解するために2009年頃から議論を行っている(例えば Jaksch 2009; Kumagai and Sekiguchi 2009; Kuwano *et al.* 2010; Jaksch 2011; Aoyama *et al.* 2011; Tsurumi *et al.* 2012; Cazaux *et al.* 2013; Nagoshi *et al.* 2013; Sato 2015; Nagoshi *et al.* 2016)。多くの議論にも関わらず、SEM を利用する研究者にとっては、本質的な理解には現在も至っていない。

裏(Ura 2013)は、SEM 像のコントラストを正確に説明するためには、どのエネルギー、角度で放出された SE や BSE が検出されているのかを示すことが重要であることを指摘している。一方、複雑化した最近の SEM の検出器に対して、一般の研究者が検出器に到達する SE や BSE のエネルギーや角度分布を推定することは極めて困難である。そこで、SE や BSE のエネルギーや角度、検出量や混合比を定性・定量的に導き出し、最近の SEM で得られる SEM 像の理解を深めることが重要だと考え、以下の研究を推進した。試料から放出された SE あるいは BSE の数と、検出器に到達した SE あるいは BSE の数の比を収集効率(Collection efficiency)を定義し、到達した SE あるいは BSE のエネルギーと角度の分布を示すアクセプタンス図を導入する。次に最近の SEM で適用されているブースター法による電磁界複合対物レンズ(ブースター対物レンズ)を仮想的に設計し、TTL、UTL、Chamber-ET それぞれの検出器に対して WD を変化させながら SE と BSE の軌道シミュレーションを実施し、収集効率、アクセプタンス図を導く。Kazemian らは、旧 FEI 社(現 Thermo Fisher Science 社)の SEM に搭載されている検出器用の偏向電圧を調整して Si の pn 接合部の観察を行い、その際、偏向電圧と検出できる SE のエネルギーの関係を求めるために、初めてアクセプタンス図を導入した(Kazemian *et al.* 2007)が、偏向電圧のエネルギー補正が目的であり、各検出器での SE や BSE の取り合いを議論したものではない。また、2次元の回転対象系でしか検討しておらず、角度分布を議論するには不十分である。本研究では、特に Chamber-ET が搭載されている方向にも注目し、三次元の角度分布も考慮する。同時に、SE₃の影響や、検出器のエネルギー感度、SE 収量や BSE 収量も考慮した検討を行う。

3.2. シミュレーション方法

3.2.1. 仮想対物レンズの設計

ブースター法を採用した電磁界複合対物レンズの磁場強度(対物レンズ励磁条件)、Cs や Cc などの電子光学系の特性をシミュレーションするために仮想設計したモデルを図 3.1(a)に、計算された軸上磁場・電場分布を図 3.1(b)にそれぞれ示す。シミュレーションソフトは、(株)日立ハイテクノロジーズの小瀬洋一主管技師が開発した有限要素法を用いた電磁界計算ソフト EMB2D を使用した。図 3.1(a)には対物レンズの外直径寸法、ブースター電圧+8 kV を印加するライナーチューブの内直径寸法、z 軸位置が記載されており、実際

に市販されている対物レンズの大きさに近い寸法になるよう考慮してある。TTL 検出器中心穴の内直径は 2 mm、UTL 検出器中心穴の内直径は 5 mm、UTL 検出器の外直径は 20 mm とした。対物レンズポールピースは接地電位に設定するため、ライナーチューブ(+8 kV)の先端と外側のポールピースの間に静電レンズが形成される。ポールピースは比透磁率 5000 の純鉄とし、巻き数 1000 ターンのコイルに、最大 2 A のコイル電流を供給でき、最大で 2000 ATurn の励磁を磁気回路に供給できる。図 3.1(b)の軸上磁場分布は、励磁が 500 ATurn (=1000 Turn x 0.5 A)の条件で計算された例で、ポールピース間で発生できる軸上最大磁束密度は 0.05 T となる。図 3.2(a)の回転対称軸の左側には磁力線を、右側には等電位線が示す。

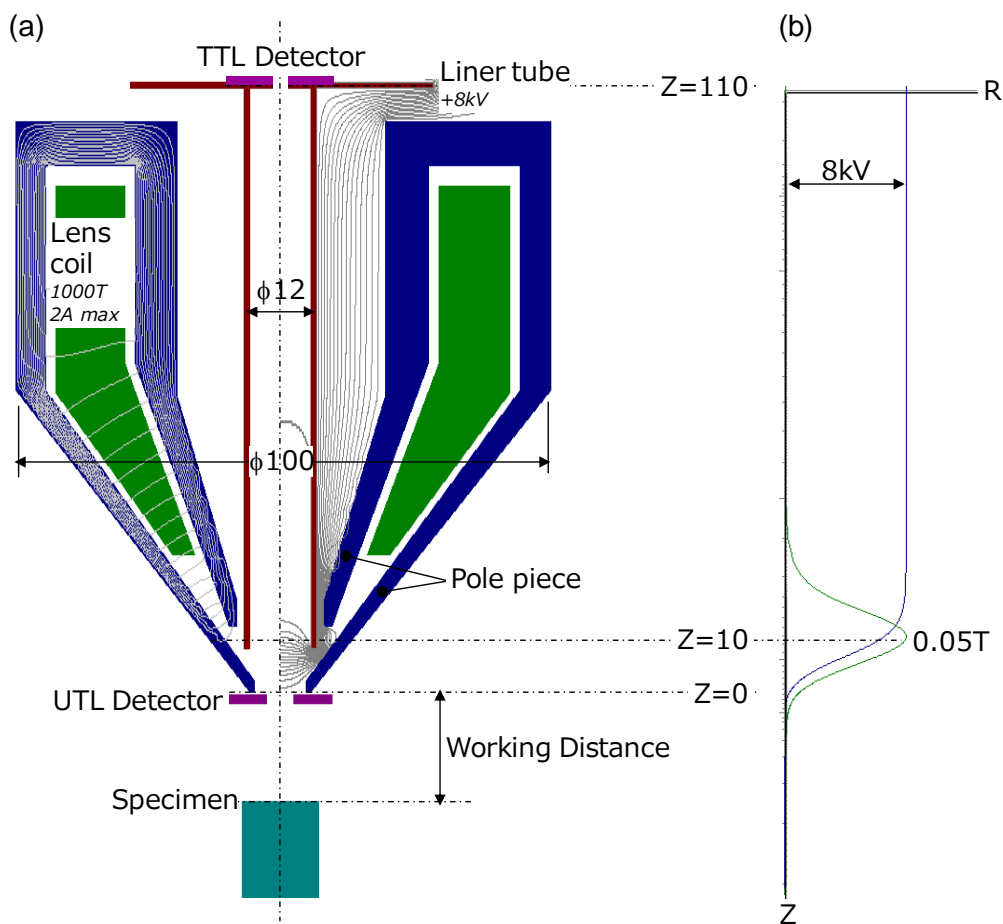


図 3.1 仮想設計した対物レンズモデル(a)と軸上磁場、電場分布(b)

次節で述べる SE や BSE の軌道を比較するため、加速電圧(V_a)は低加速で高分解能観察を行う 1 kV と、X 線を用いた分析などで良く使用される 15 kV を選択し、一方、WD の傾向を把握する際のために 3~20 mm で変化させた。 V_a と WD を変化させると、ブースター電圧は通常 +8 kV で固定であるから、一次電子をフォーカスするためには磁場コイルの励磁条件を変える必要がある。一方、 V_a が小さく、WD が長くなると、ブースター電圧が形成する静電レンズの影響が強くなるため、例えば WD=20 mm では、試料上にフォーカスする前の空間でクロスオーバーを形成してしまう。回転対象の電磁界レンズは凹レンズが実現できないため、静電レンズの効果を緩めない限り磁場レンズの励磁を調整してフォーカスすることができなくなる。従って、 $V_a=1$ kV、WD=20 mm の条件では、ブースター電圧 +8 kV をオフにして静電レンズを形成せず、磁場レンズだけで一次電子をフォーカスして特性計算を実施した。表 3.1 に、励磁条件、 C_s 、 C_c を計算した結果を示

す。比較のため、市販されている Carl Zeiss 社の SEM の対物レンズのベースとなっている Frosien らの計算結果を示す(Frosien *et al.* 1989)。電子光学系の特性は近い値を示しており、次節以降の軌道シミュレーションの結果の妥当性を裏付けることができる。

表 3.1 仮想設計した対物レンズの電子光学系特性

	Va [kV]	WD [mm]	NI [ATurn]	Cs [mm]	Cc [mm]	
This Work	1	3	572	5.1	2.7	
		5	486	7.9	3.9	
		10	304	27.5	8.6	
		15	102	84	15	
		20	175	393	31	
	15	3	1174	25.9	9.2	
		5	1091	37.5	11.0	
		10	947	83.3	15.9	
		15	853	161.3	21.4	
		20	787	282.6	27.4	
	0.5	3	489	3.0	1.9	
	Frosien <i>et al.</i>	0.5	-	402	3.7	1.8

3.2.2. 軌道シミュレーション

図 3.2 に、3 次元の軌道シミュレーションのために作成したモデル(a)と、その断面モデル(b)を示す。図 3.2(a)には、試料室(Chamber)は含まれていない。シミュレーションソフトは、(株)日立ハイテクノロジーズの小瀬洋一主管技師が開発した有限要素法を用いた電磁界計算ソフト MAG3D を使用した。TTL や UTL 検出器は回転対象軸に配置されているため、軌道計算の際も通常は 2 次元のシミュレータで計算できる。一方 Chamber-ET 検出器の場合、回転対称軸から外れて配置されているため、3 次元のシミュレータが必要になる。MAG3D は電位分布の計算はできるが、磁場分布の計算はできない。しかし、形状が全く同じ対物レンズに対して EMB2D で計算した回転対象の磁場分布を、MAG3D で作成する 3 次元の各分割メッシュに割り当てることができる。図 3.2(b)には、図 3.1(a)と同様に、磁力線と等電位線が示されているが、シンチレータの表面には+10 kV のバイアスが印加されているため、この影響による等電位線が追加されている。SE を効率良くシンチレータに誘導するために、軌道入射部にグリッドを具備してバイアスを印加する Chamber-ET 検出器も存在する(Konvalina and Müllerová 2006)。本研究で実施したシミュレーションではグリッドは考慮しなかったが、WD=20 mm で、UTL 検出器と試料のちょうど中間の光軸上で、シンチレータ表面に印加した+10kV から染み出してくる電位が+10 V になるように、検出器の位置を調整した。Konvalina らのシミュレーション結果(Fig. 4(b, c))によると、WD=20 mm のとき、仮定した光軸上の同じ位置で+5 V の電位の染み出しがあり、SE の収集効率率は約 40%である。一方本研究では、後で図 3.15 に示すが、約 75% の二次電子収集効率率が得られており、グリッドがないことによる SE の収集効率低下はない。

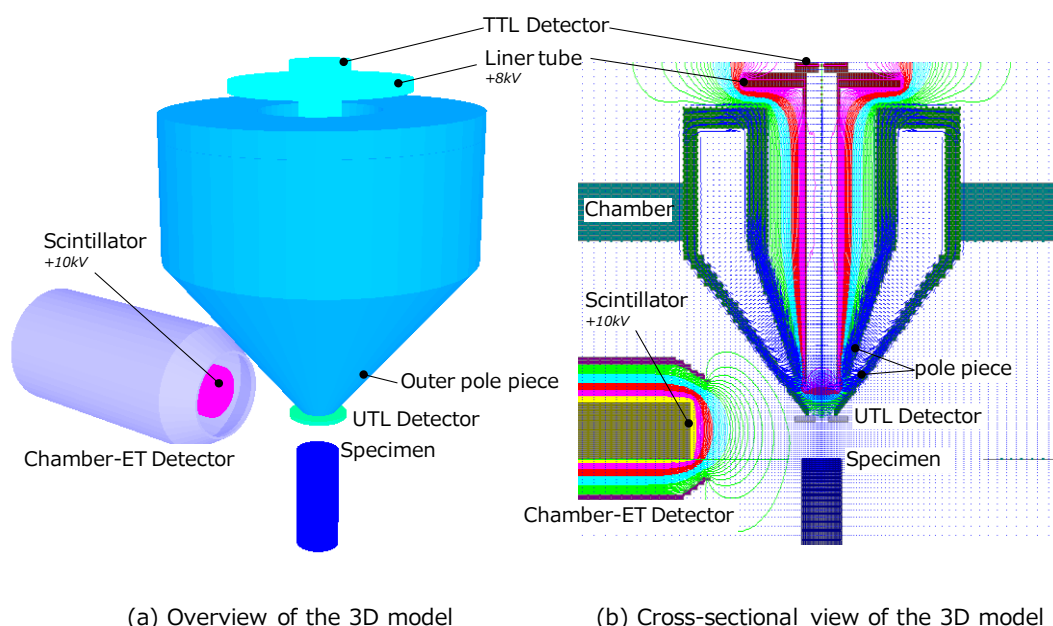


図 3.2 シミュレーションに用いた 3D モデル(a)と断面モデル(b)

一旦シミュレーションモデルが形成できれば、それぞれの部品要素や真空部分を 1,000,000 以上のセクションに 3 次元的に分割し、有限要素法を用いて、それぞれのセクションに、電位、磁束密度が付与される。その後、試料から SE や BSE を放出させる軌道シミュレーションを実施し、検出器に到達する SE や BSE を導き出すことができる。

軌道シミュレーションでは、10,000 本の SE と BSE を試料から放出させるが、SE や BSE には、エネルギー分布や角度分布があり、それぞれの SE と BSE に重みをつけて、エネルギーと角度を割り当てる。まず SE のエネルギー分布は、過去に文献で議論されているが(Baroody 1950, Dekker 1952, Bruining 1954, Chung and Everhart 1974, Kazemian *et al.* 2007)、本研究では Kazemian らが示した次式の分布を利用した。

$$n_{SE}(E_{SE}) \approx \frac{1}{3} E_{SE} \exp \left[2 - \sqrt{\frac{4}{3} E_{SE}} \right] \quad (3.1)$$

ここで、 E_{SE} は SE のエネルギー、 $n_{SE}(E_{SE})$ は入射電子一個あたりに発生する SE の数で、最も数が多い E_{SE} で 1 になるように規格化されている。(3.1)式による SE 分布を図 3.3(a)に示す。実際にエネルギー分布に重みを付けて 10,000 の軌道にエネルギーを割り当てる場合、図 3.3 から明らかなように同じ $n_{SE}(E_{SE})$ に対して、二つの E_{SE} が存在するため、 $n_{SE}(E_{SE})$ に乱数(0~1)を発生させて E_{SE} を決めることができない。そこで、式(3.1)の累積分布関数 $N_{SE}(E_{SE})$ を作成して E_{SE} と $n_{SE}(E_{SE})$ が 1 対 1 に対応するようにし、更に $N_{SE}(E_{SE})$ の最大値で規格化した関数を作成した。規格化したのは、通常乱数の発生は 0 から 1 となることと、累積分布関数そのものが SE 収量と等価であり、シミュレーションで求める収集効率(試料から放出された 10,000 本の軌道のうち、何本が各検出器に到達するか)と、文献や実験で求められる SE 収量の積で、1 個の一次電子の試料への入射に対して何個の SE や BSE が検出器に到達するかを、後に容易に見積もることができるからである。SE の規格化された累積分布関数 $N_{SE}(E_{SE})$ は、次式で示すことができる。

$$N_{SE}(\varepsilon) = 1 - \left(1 + \varepsilon + \frac{1}{2}\varepsilon^2 + \frac{1}{6}\varepsilon^3\right) \cdot e^{-\varepsilon} \quad (3.2)$$

ここで、

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{4}{3}E_{SE}}$$

$N_{SE}(E_{SE})$ に対して乱数を発生させて E_{SE} を決定したいが、(3.2)式から E_{SE} に変換することは困難なため、Excel 上で E_{SE} と $N_{SE}(E_{SE})$ のテーブルを作成し、Lookup 関数を用いて乱数で生成した $N_{SE}(E_{SE})$ に対応する E_{SE} を求めた。

BSE に対しては、第2章で紹介した故神田公生氏が開発された電子と試料の相互作用をモンテカルロ計算して BSE のエネルギー分布が出力できるソフトから、BSE のエネルギー分布を近似的に3角形の分布を以下で定義した。

$$n_{BSE}(E_{BSE}) \approx \begin{cases} \frac{E_{BSE}}{0.95E_{PE}} & \text{for } 0 \leq E_{BSE} < 0.95E_{PE} \\ 20 - \frac{E_{BSE}}{0.05E_{PE}} & \text{for } 0.95E_{PE} \leq E_{BSE} \end{cases} \quad (3.3)$$

E_{PE} は一次電子のエネルギー、 E_{BSE} は BSE のエネルギー、 $n_{BSE}(E_{BSE})$ は入射電子一個あたりに発生する BSE の数で、最も数が多い E_{BSE} で 1 になるように規格化されている。(3.3)式による BSE 分布を図 3.3(b)に示す。各軌道の E_{BSE} は、SE と同様、最大値を規格化した累積分布関数 $N_{BSE}(E_{BSE})$ とすると、次式が得られる。

$$N_{BSE}(E_{BSE}) \approx \begin{cases} \frac{E_{BSE}^2}{0.95E_{PE}^2} & \text{for } 0 \leq E_{BSE} < 0.95E_{PE} \\ 1 - \frac{(E_{PE} - E_{BSE})^2}{0.05E_{PE}^2} & \text{for } 0.95E_{PE} \leq E_{BSE} \end{cases} \quad (3.4)$$

(3.4)式から E_{BSE} を数式整理で求めることが容易であり、次式で表される。

$$E_{BSE} \approx \begin{cases} \sqrt{N_{BSE}(E_{BSE}) \cdot 0.95E_{PE}^2} & \text{for } 0 \leq E_{BSE} < 0.95E_{PE} \\ E_{PE} - \sqrt{(1 - N_{BSE}(E_{BSE})) \cdot 0.05E_{PE}^2} & \text{for } 0.95E_{PE} \leq E_{BSE} \end{cases} \quad (3.5)$$

$N_{BSE}(E_{BSE})$ に対して乱数を発生させて直接的に E_{BSE} を求めた。

SE と BSE の角度分布は、実験的には Jonker によって検証されており (Jonker 1951; Jonker 1957)、試料表面からの放出角を θ とすると、 $\phi (=90-\theta)$ がコサイン則に従うとされている。ただしコサイン則は 2 次元的な放出に限定された考え方で、実際には 3 次元的な放出則を導く必要がある。図 3.4 にシミュレーションに用いた 3 次元的な角度分布を求めるための模式図を示す。図から、

$$n(\phi) = \int_0^\phi 2\pi r \cdot d\phi = 2\pi \int_0^\phi \sin \phi \cos \phi \cdot d\phi = 2\pi \cdot \sin^2 \phi \quad (3.6)$$

積分の全範囲は $0 \sim \pi/2$ となるため、積分すると 2π となる。(3.6)式を 2π で規格化すると、SE や BSE の放出角に決めるための角度分布 $N(\phi)$ は、次式で表される。

$$N(\phi) = \sin^2 \phi \quad (3.7)$$

放出角 θ を数式整理で求めることは容易であり、次式で表される。

$$\theta = 90 - \frac{180}{\pi} \sin^{-1} \sqrt{N(\phi)} \quad (3.8)$$

(3.8)式から、 $N(\phi)$ に対して乱数を発生させて直接的に放出角 θ を求めた。最後に、方位角に関しては均一な分布を想定し、発生させる乱数と 360° の積で求めた。

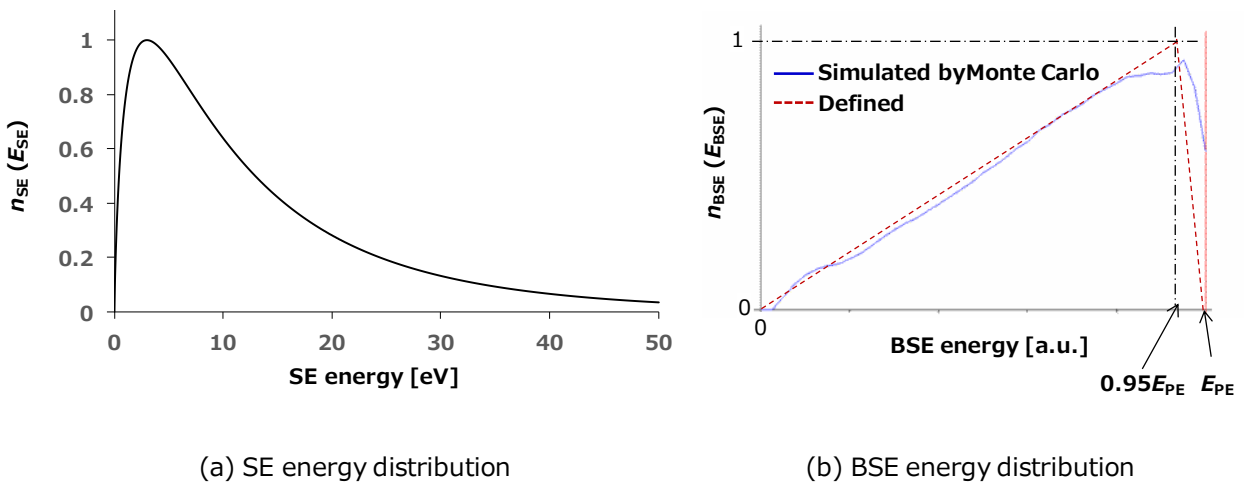


図 3.3 シミュレーションに用いた SE(a)と BSE(b)のエネルギー分布

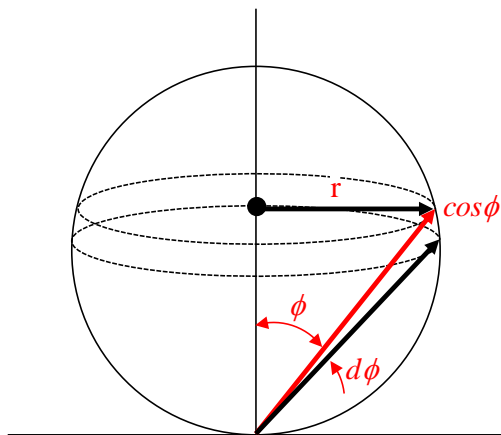


図 3.4 SE と BSE の放出角度分布の計算モデル

3.3. 実験結果

3.3.1. 加速電圧 1 kV の場合

図 3.5 に、 $V_a=1$ kV、 $WD=15$ mm の条件でシミュレーションにより求めた SE、BSE の 3 次元軌道図(a) と 2 次元断面図(b)を示す。シンチレータに印加されている+10 kV のバイアスによって、UTL 検出器と試料の間には数 V の電位が入りこんでおり、その電位によって、エネルギーの低い SE は Chamber-ET 検出器の方向に引っ張られている。一方、数 V の電位は BSE の軌道を変えるには弱く、BSE の軌道はほぼ真っ直ぐに試料室内に発散している。図 3.5(b)を見ると、いくらかの割合の SE と BSE が対物レンズ内部に引き込まれ、TTL 検出器に到達している。3.2.2 節で述べた方法でエネルギーと角度が割り当てられた 10,000 本の軌道は、1 から 10,000 の番号が割り振られている。どの番号の軌道がそれぞれの検出器に到達したかをシミュレーションソフトによって抽出できるため、放出時のエネルギーと角度が判り、アクセプタンス図が作成できる。

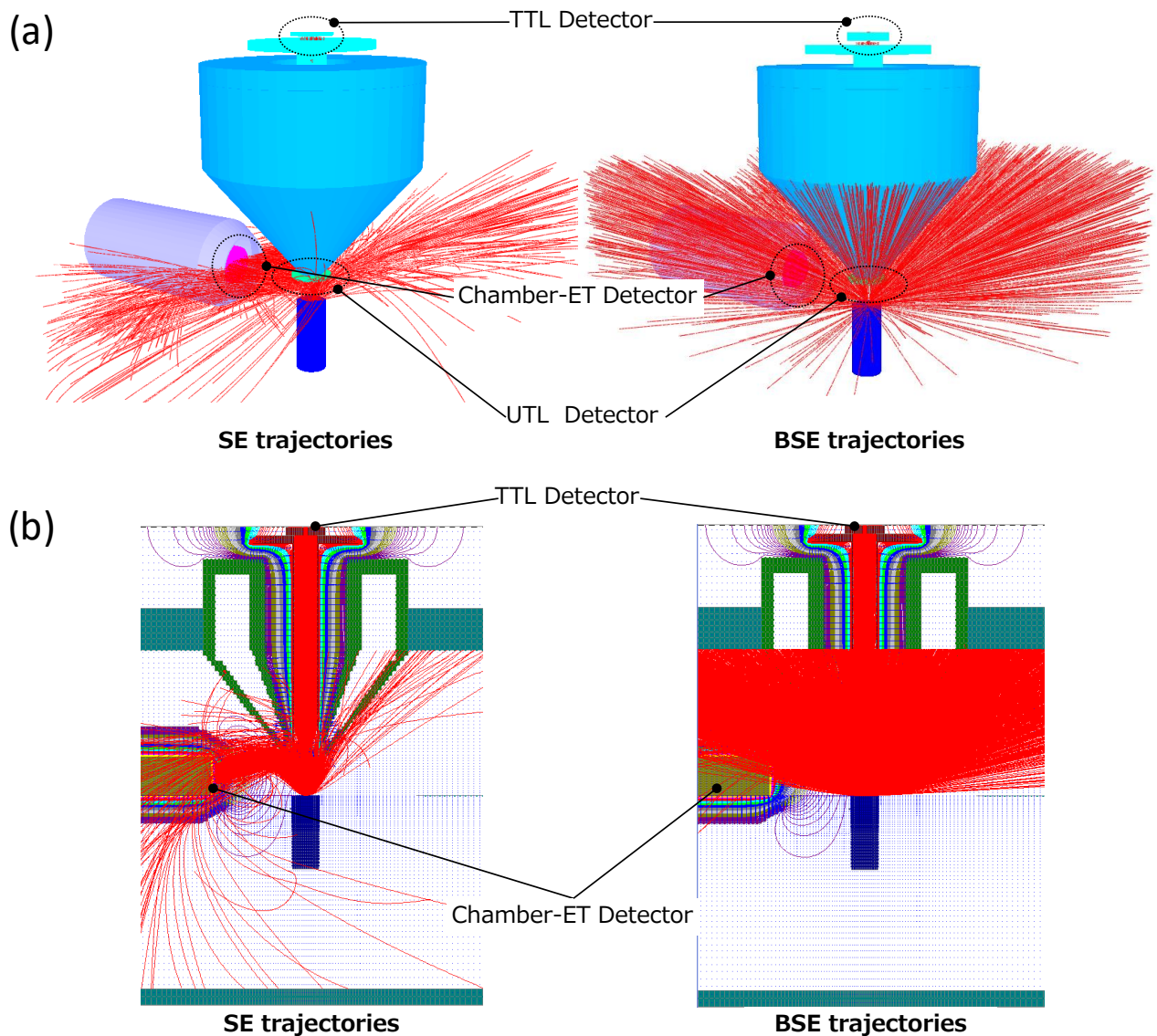


図 3.5 $V_a=1$ kV、 $WD=15$ mm での SE、BSE の 3 次元軌道図(a)と 2 次元断面図(b),

図 3.6 に、全ての SE と BSE が検出できたことを仮定した場合、 $V_a=1$ kV の条件で得られる SE のアクセプタンス図(a)、BSE のアクセプタンス図(b)と 3次元の方位角分布(c)を示す。BSE の最大エネルギーは一次電子と同じ 1kV となる。図の点の数は 10,000 個である。放出角 $\theta=90^\circ$ は、試料表面から垂直に放出された電子を指し、一般的には High Angle SE/BSE と呼ばれる。図 3.6(c)のドットの色は、SE と BSE のアクセプタンス図の間にある矢印の色に関連している(正確に一致するわけでない)。図 3.6(c)には、各検出器の方向が示されており、TTL 検出器と UTL 検出器は垂直方向(中心軸)、Chamber-ET 検出器は軸外方向にあり、以降のシミュレーション結果の目安となる。図 3.6 は、発生させた SE や BSE のエネルギーと角度の分布と等価である。図 3.6(a)(b)を見ると、SE は数 eV で点の密度が高く、BSE は 900~1000 eV で点の密度が高い。即ち図 3.3 で示したエネルギー分布に従った分布が反映されている。放出角度分布も 45° 方向の点の密度が一番高く、(3.7)式に従っている。図 3.6(c)から方位角に関しては一様に点が分散している。

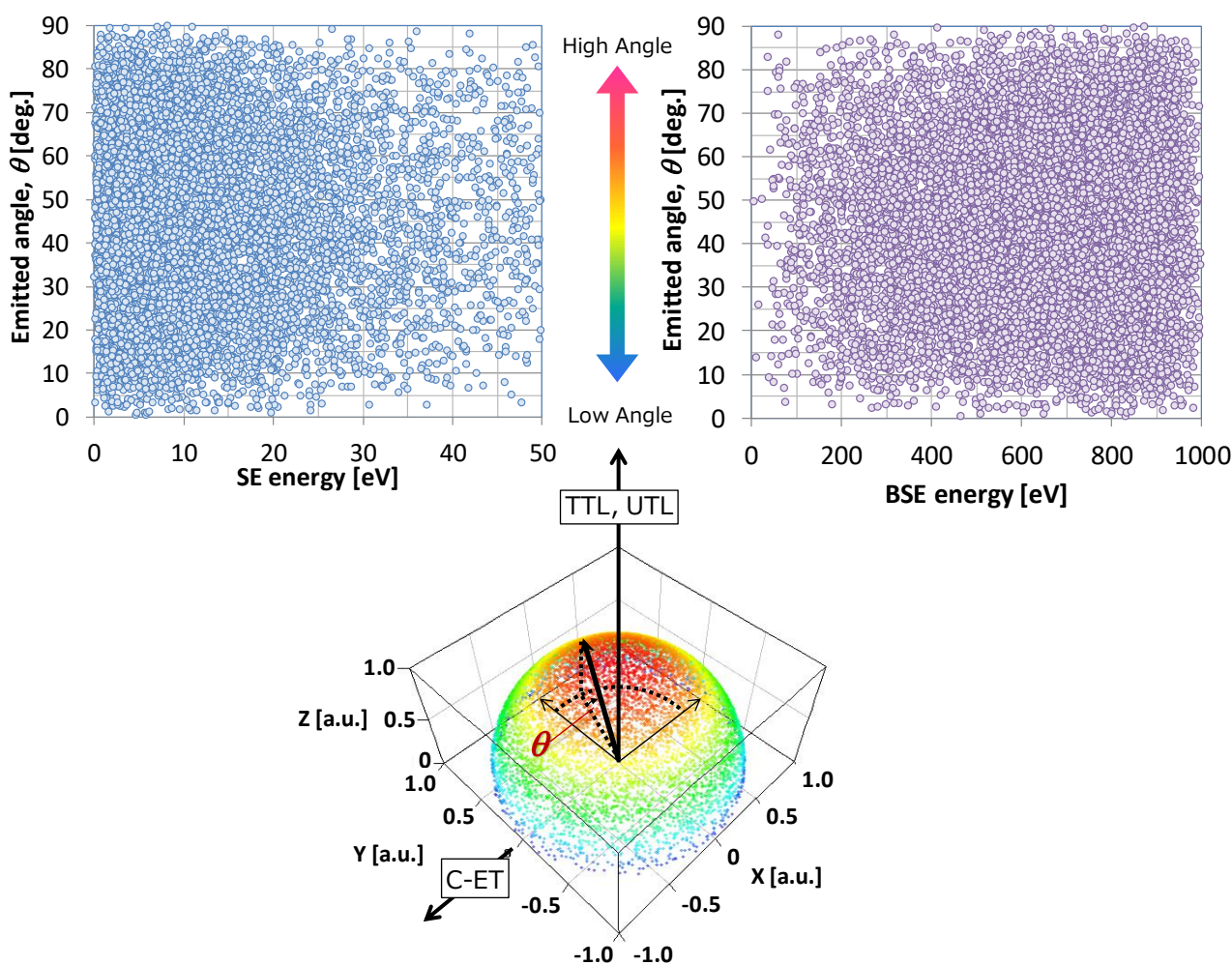


図 3.6 $V_a=1$ kV で、放出された全電子を検出できると仮定したときの SE のアクセプタンス図(a)、BSE のアクセプタンス図(b)と 3次元の方位角分布(c),

WD=3 mm の条件で得られる SE のアクセプタンス図とそれぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図3.7 に示す。73.6% の SE が TTL 検出器に到達するが、UTL 検出器、Chamber-ET 検出器には全く到達しない。試料と UTL 検出器の距離は 1mm しかなく、Chamber-ET 検出器のシンチレータ面(+10 kV)から UTL 検出器と試料の間に電界は入り込まず、対物レンズのライナー電極(+8kV)から試料側に漏れ出している電位により、ほとんどの SE が対物レンズ内に引き込まれる。方位角分布は対称なので、この条件では 3次元の方位角分布は確認する必要はない。45° 以下の角度で見ると、10 eV 以下の低いエネルギーの SE が TTL 検出器に、10 eV 以上の高いエネルギーの SE が UTL 検出器に、それぞれ到達している。一方、45° 以上の角度の SE は TTL 検出器にのみ到達している。これは、対物レンズのブースター電位から漏れている電界は、広い角度範囲の低エネルギーの SE をカラム内に引き込むには十分だが、高いエネルギーで、高角に放出された SE をカラム内に引き込むには不十分なためである。80° 以上の高角の部分を除いた TTL 検出器のアクセプタンス図には、到達しないエリアが存在する。このエリアのエネルギーと角度を持った SE は、一旦対物レンズ内に引き込まれるものの、ライナー電極に衝突して TTL 検出器まで到達しない。この際、エネルギーの低い SE も +8 kV まで加速されているため、衝突点から SE₃が放出される。放出された SE₃のエネルギーは SE と同じエネルギー帯であるから、SE と同じエネルギーで TTL 検出面のシンチレータに衝突するが、シンチレータにエネルギー感度がなく、SE₃は検出されない。TTL 検出器の方位角分布の中心にある非到達領域(80° 以上)は、TTL 検出器の中心穴を通過した SE である。

WD=3 mm の条件で得られる BSE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図3.8 に示す。Chamber-ET 検出器には BSE はほとんど到達しないが、22.0%、22.5%が TTL 検出器、UTL 検出器でそれぞれ到達する。BSE の方位角分布は、TTL 検出器と UTL 検出器が対称となる。Chamber-ET 検出器に BSE が到達しないのは、UTL 検出器と試料の空間が 1 mm しかないため、試料上の BSE 出射点から Chamber-ET 検出器をほとんど見込むことができないためである。それぞれの検出器への BSE の軌道は、BSE のエネルギーが高いためほとんど直線的であるから、収集効率は、単に BSE の放出点と検出面から計算できる立体角に依存する。ただし、図 3.17 で示す 15 kV の場合と比較すると、Chamber-ET 検出器に近づくほど電界の影響が強くなり、その影響を受けて軌道が曲げられて検出器に到達する BSE もある。TTL 検出器の方位角分布の中心にある非到達領域は、TTL 検出器の中心穴を通過した BSE である。TTL 検出器と UTL 検出器の間の非到達領域に関しては、SE と同じくライナー電極に衝突した BSE が起因している。以下、他の WD の BSE のアクセプタンス図を示していくが、WD が長くなるとそれぞれの検出器に到達する角度範囲が高角(90°)方向にシフトし、TTL 検出器と UTL 検出器の間の非到達領域が小さくなっていく。

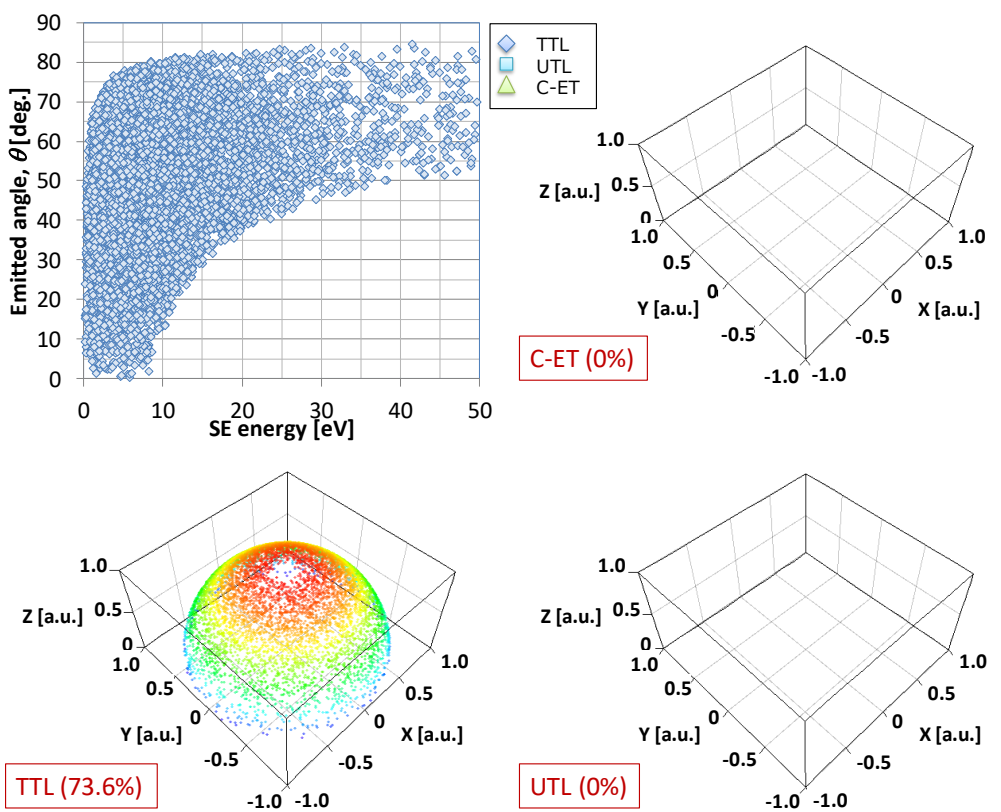


図 3.7 $V_a=1$ kV、 $WD=3$ mm の SE のアクセプタンス図と方位分布

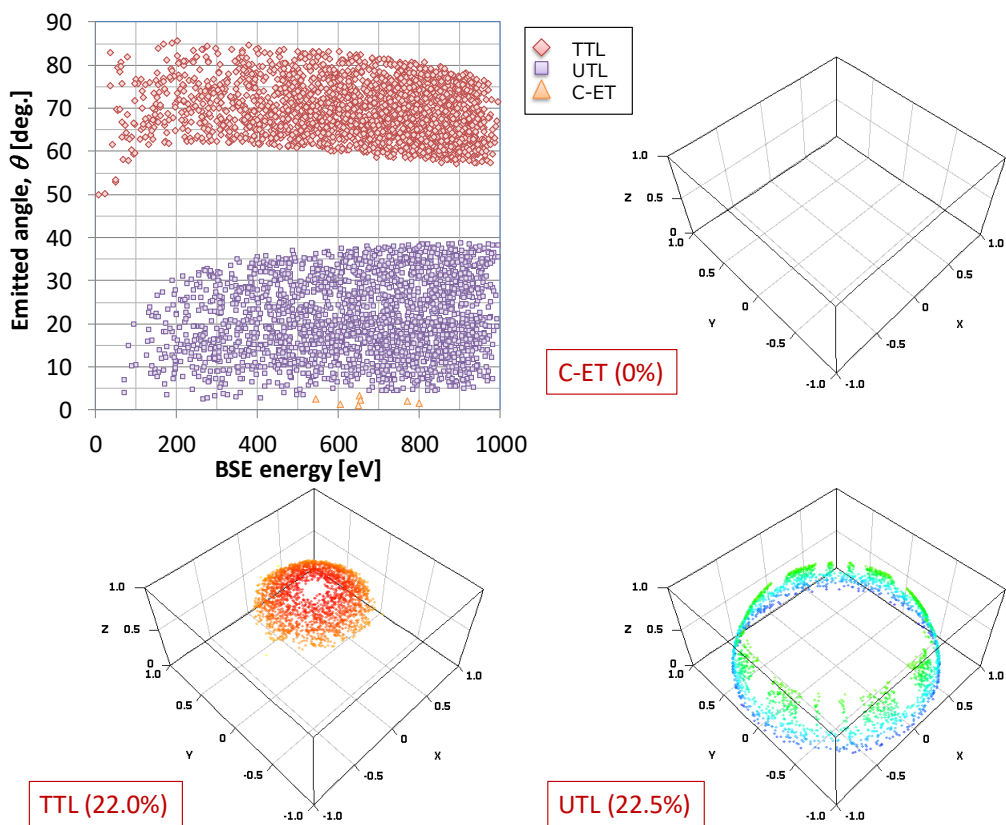


図 3.8 $V_a=1$ kV、 $WD=3$ mm の BSE のアクセプタンス図と方位分布

WD=5 mm の条件で得られる SE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.9 に示す。48.3%、9.4%が TTL 検出器、UTL 検出器にそれぞれ到達する。一方、Chamber-ET 検出器には WD=3 mm と同じ理由により、SE が到達しない。方位角分布は、TTL 検出器、UTL 検出器共に対称なので、この条件では 3次元の方位角分布は確認する必要はない。40° 以下の角度で見ると、5 eV 以下の低いエネルギーの SE が TTL 検出器で、10eV 以上の高いエネルギーの SE が UTL 検出器で、それぞれ検出されている。一方、40° 以上の角度の SE は TTL 検出器でのみ検出されている。TTL 検出器と UTL 検出器のアクセプタンス図の間の領域には、SE が到達しないエリアが存在する。このエリアのエネルギーと角度を持った SE は、一旦対物レンズ内に引き込まれるものの、ライナー電極に衝突して TTL 検出器まで到達しない。TTL 検出器の方位角分布の中心にある非到達領域は、TTL 検出器の中心穴を通過した SE である。これらの傾向は全て WD=3 mm と同じ理由による。WD=3 mm、5 mm では、方位角分布が対称的なため、得られる SEM 像は、試料に凹凸があったとしても、エッジ効果は観察できるものの全方位で積分され、試料そのものの凹凸の影響は反映され難い。これは図 2.9 で述べたように、光軸対称に配置された TTL 検出器では、検出器の配置に依存した陰影の効果が得られないためである。

WD=5 mm の条件で得られる BSE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.10 に示す。Chamber-ET 検出器に 0.9%しか到達しないが、17.7%、53.6%が TTL 検出器、UTL 検出器でそれぞれ到達する。2mm の WD の変化であるが、TTL 検出器を見込む立体角は減り、UTL 検出器を見込む立体角は増えるため、それに従って収集効率に変化している。方位角分布は、TTL 検出器、UTL 検出器共に対称なので、この条件では 3次元の方位角分布は確認する必要はないが、Chamber-ET 検出器は検出器の配置位置に依存して方位角の影響を受ける。この条件では、Chamber-ET 検出器に SE はほとんど到達しないため、0.9%と少ないながらも BSE 検出器として動作する。15° 以下の低角の BSE は、Chamber-ET 検出器に到達する BSE 以外は、試料室内壁に衝突するため、どの検出器にも到達しない。TTL 検出器の方位角分布の中心にある非到達領域、TTL 検出器と UTL 検出器の間の非到達領域が出現する理由は、WD=3 mm と同じであるが。しかし、TTL 検出器の中心の非到達領域は小さくなり、TTL 検出器と UTL 検出器の間の非到達領域の間隔も狭くなる。これは以降 WD が長くなっていくと同じ傾向を示し、対物レンズ内部や UTL 検出器の穴を見込む立体角が小さくなっていくことが要因である。

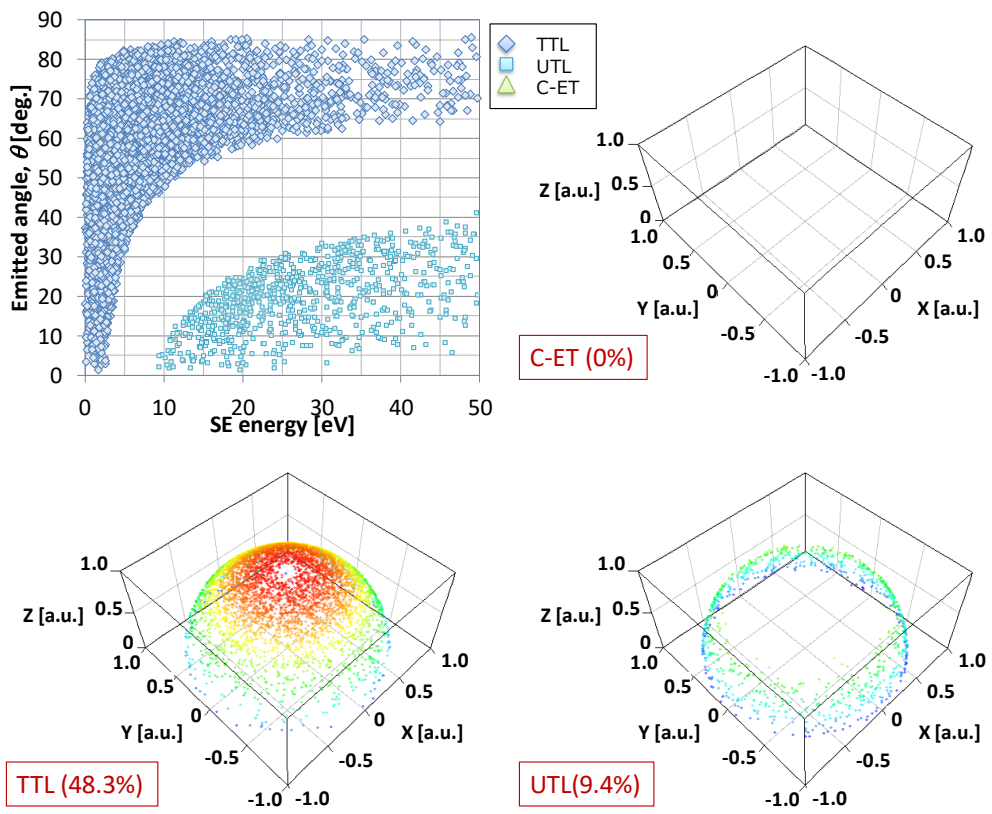


図 3.9 Va=1 kV、WD=5 mm の SE のアクセプタンス図と方位分布

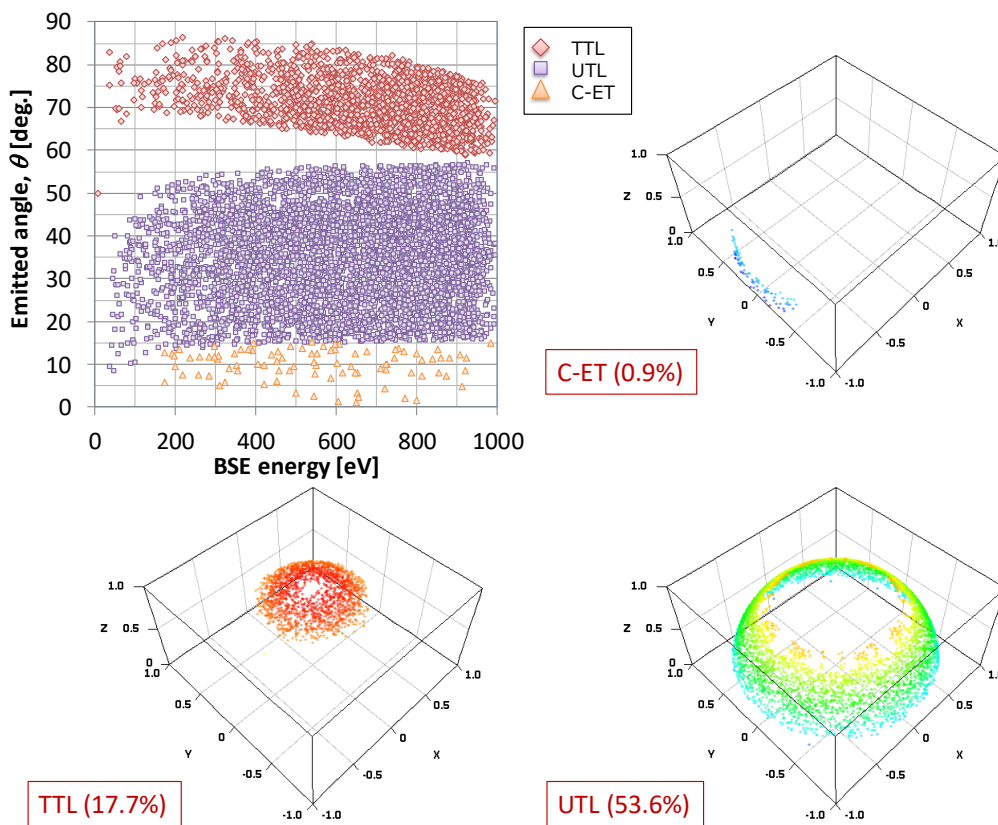


図 3.10 Va=1 kV、WD=5 mm の BSE のアクセプタンス図と方位分布

WD=10 mm の条件で得られる SE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.11 に示す。8.2%、42.1%が TTL 検出器、UTL 検出器にそれぞれ到達する。一方、Chamber-ET 検出器への SE 到達量が増えて 18.1%となる。方位角分布は、Chamber-ET 検出器への SE 到達量が増えたことにより、TTL 検出器、UTL 検出器共に非対称になり、3次元の方位角分布を考慮する必要があるが出てくる。Chamber-ET 検出器のシンチレータに印加している+10 kV が作る UTL 検出器と試料の間に浸み出してくる電位は、試料表面から検出器方向に放出された SE を Chamber-ET 検出器に導くのに十分な強さであるが、垂直方向に放出された SE を導くには未だ弱い。WD が 10 mm から長くなると、TTL 検出器や UTL 検出器に到達する SE の方位角分布は、Chamber-ET に到達する SE の方位角分布の傾向に依存して変化していく。TTL 検出器には、90° に近い高角と、Chamber-ET 検出器と反対方向に放出された 5 eV 以下の低角の SE のみ到達する。一部はライナー電極と衝突して TTL 検出器の到達しない SE もあるが、WD=10 mm になると、UTL 検出器に到達していない 30° 以下の SE があり、これらは Chamber-ET の設置方向とは逆の方向に放出された SE であり、最終的には試料室内壁に衝突する。Chamber-ET 検出器に到達する SE が多くなると、試料に凹凸がある場合は、検出器方向の面が明るくなる一方、TTL 検出器の場合、Chamber-ET 検出器と逆の方向の面が明るくなる傾向となる。

WD=10 mm の条件で得られる BSE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.12 に示す。5.8%が TTL 検出器に、53.7%が UTL 検出器に光軸に対して対称的に到達する。一方、5.0%の BSE が Chamber-ET に非対称的に到達する。WD=5 mm と同じく、Chamber-ET 検出器の収集効率は、立体角分が大きくなった分向上する。一方、WD が長くなった分立体角が小さくなる TTL 検出器の収集効率は WD=5mm より減少する。UTL 検出器の収集効率は検出器の大きさや、中心の穴径に依存するが、本研究のシミュレーション例では、WD=10 mm で立体角が最大となるため、BSE の収集効率も WD=10mm で最大となる。BSE の収集効率を合計すると 64.5%となるが、残りの検出器に到達しない 35.5%の BSE は、試料室内壁に衝突して SE と同じエネルギー分布を持った 3 次電子(SE₃)を発生する。これらの SE₃の少なくとも半分程度(22.7%)は Chamber-ET に到達するので、図 3.11 の Chamber-ET 検出器の SE の収集効率 18.1%と比較すると、27.7%(22.7%+5%)と SE よりも多い到達量となり、Chamber-ET 検出器に含まれる情報は SE と BSE が混在し始めるが、BSE の情報の方が多いと考えられる。SE と BSE の混在に関しては全ての検出器で同じことが言えるが、TTL 検出器、UTL 検出器共に、BSE が軸対称なのに対し、SE は Chamber-ET 検出器の設置方向とは逆方向の方位角情報となることに注意が必要である。

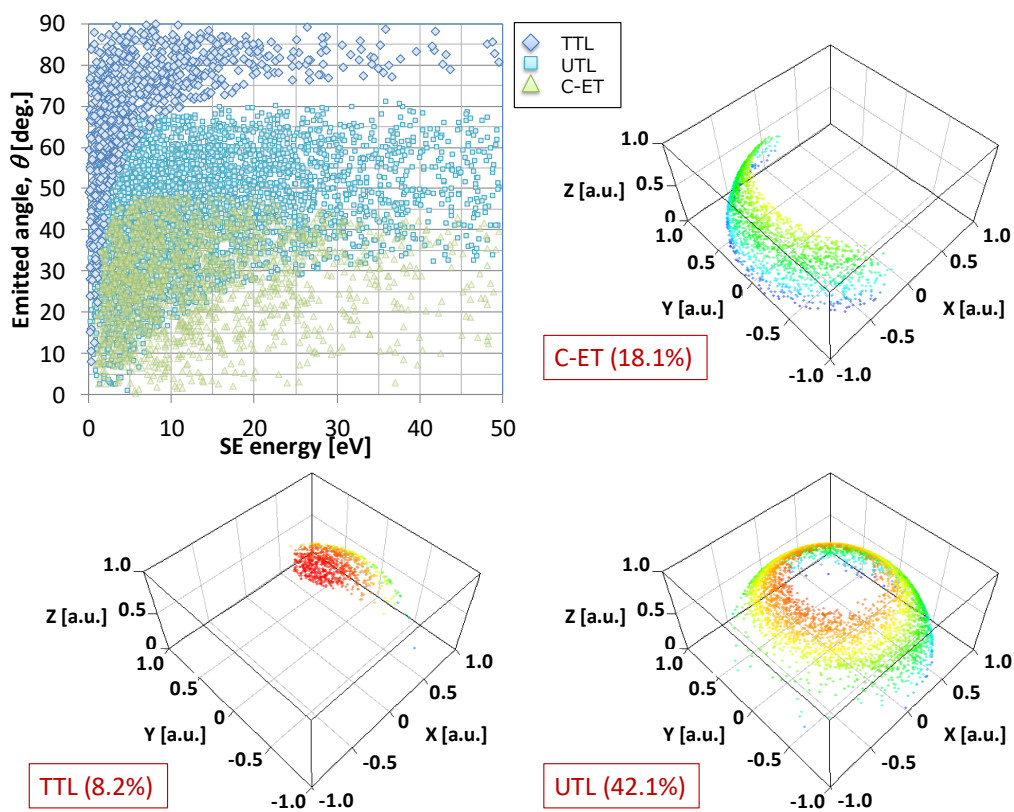


図 3.11 $V_a=1$ kV、 $WD=10$ mm の SE のアクセプタンス図と方位分布

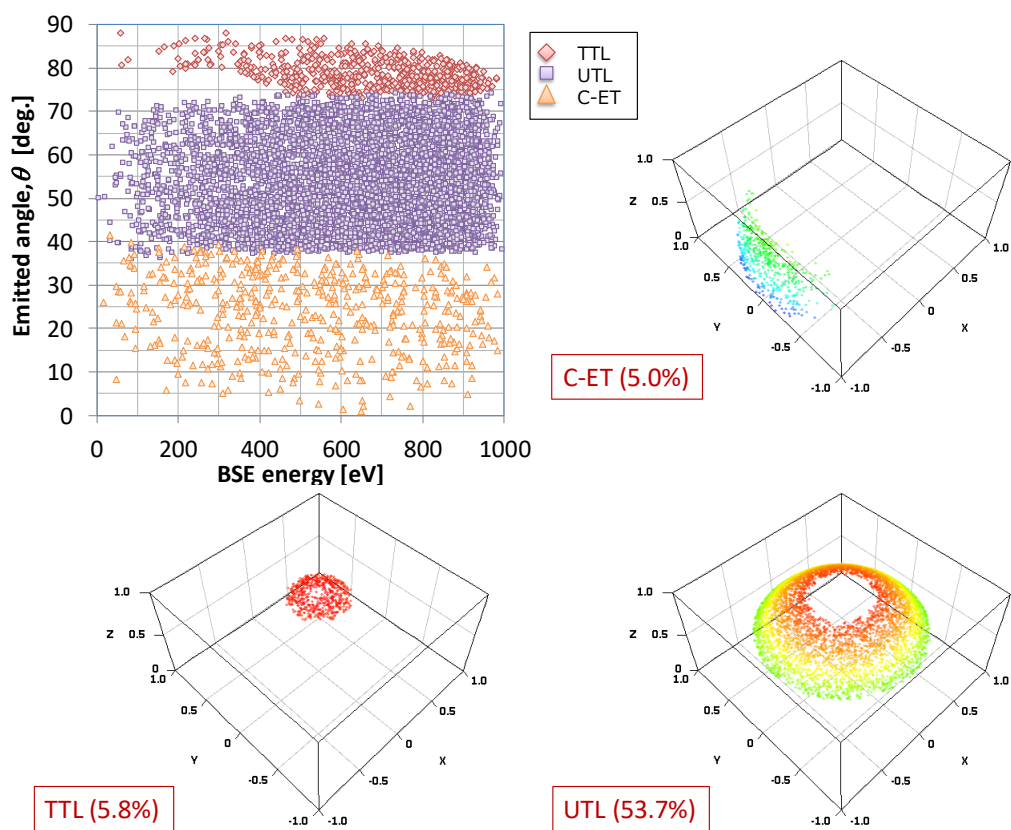


図 3.12 $V_a=1$ kV、 $WD=10$ mm の BSE のアクセプタンス図と方位分布

WD=15 mm の条件で得られる SE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.13 に示す。50%の SE が Chamber-ET 検出器に到達するが、方位角分布は非対称である。残りの SE は、1.6%が TTL 検出器に、27.7%が UTL 検出器に到達する。即ち WD=15 mm になると、TTL 検出器は若干の SE は検出するもの、もはや軸対称の検出はできなくなる。Chamber-ET 検出器のシンチレータに印加している+10 kV が作る UTL 検出器と試料の間に浸み出してくる電位は、試料表面から 90° で放出された SE を Chamber-ET 検出器に導くことが可能となる。Chamber-ET 検出器側で垂直に近い角度で放出された SE のうち、一部浸み出した電界がまだ弱くて曲がりきれずに UTL 検出器に到達する。UTL 検出器に到達していない 40° 以下の SE は、Chamber-ET の設置方向とは逆の方向に放出された SE であり、最終的には試料室内壁に衝突する。従って試料に凹凸がある場合の SEM 像のコントラストは、WD=10 mm と同じ傾向となる。Chamber-ET 検出器や UTL 検出器のアクセプタンス図を見ると、SE の広いエネルギー、角度範囲で均一に検出できているように見える。しかし方位角分布を見ると、Chamber-ET 検出器と UTL 検出器で検出できる SE の方位角は全く反対方向となる。この傾向は、2次元のアクセプタンス図では評価することができない。

WD=15 mm の条件で得られる BSE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.14 に示す。2.3%が TTL 検出器で、35.2%が UTL 検出器に光軸に対して対称的に到達する。一方、7.1%の BSE が Chamber-ET に非対称的に到達する。WD=10 mm と同じく、Chamber-ET 検出器の収集効率は、立体角分が大きくなった分だけ向上する。一方、WD が長くなった分立体角が小さくなる TTL 検出器や UTL 検出器の収集効率は、WD=10 mm よりも減少する。BSE の収集効率を合計すると 44.6%となるが、残りの検出器に到達しない 55.4%の BSE は、試料室内壁に衝突して SE₃ を発生する。これらの SE₃ の少なくとも半分程度(27.7%)は Chamber-ET で検出できるので、図 3.13 の Chamber-ET 検出器の SE の収集効率 50%と比較すると、34.8%(27.7%+7.1%)と、依然として割合は大きく、Chamber-ET 検出器に含まれる情報は SE の情報が強くなるとは言え、BSE の情報が混在する。TTL 検出器と UTL 検出器の SE と BSE の混在の傾向は、WD=10 mm と同様である。

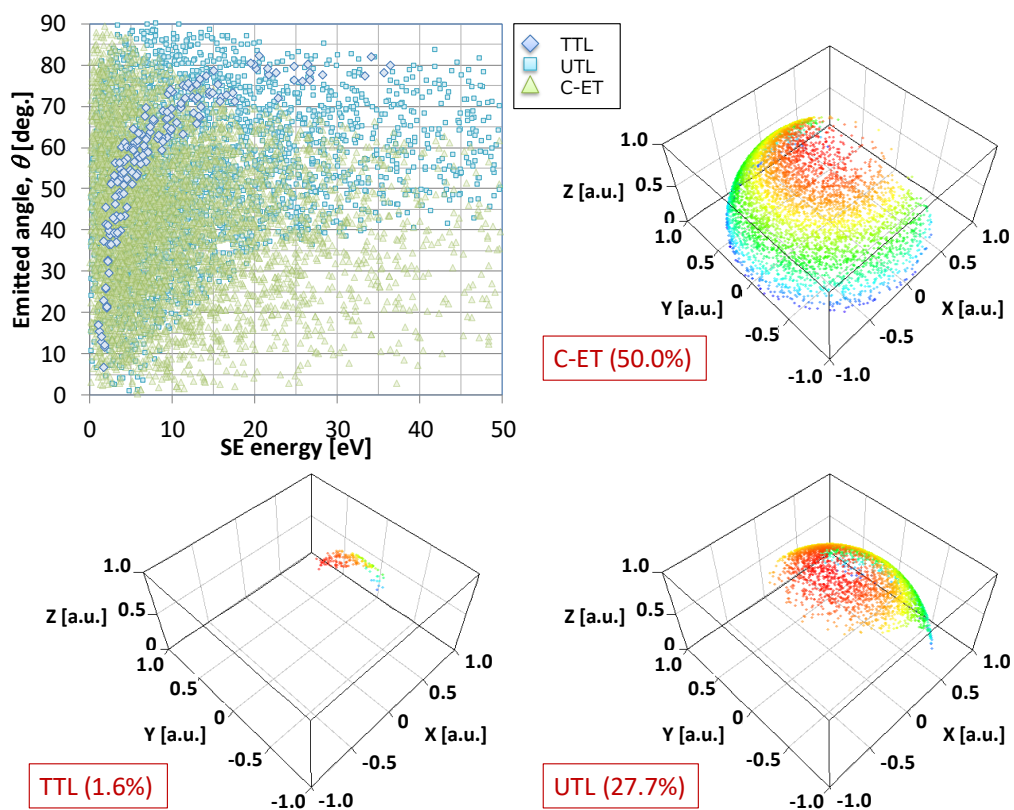


図 3.13 $V_a=1$ kV、 $WD=15$ mm の SE のアクセプタンス図と方位分布

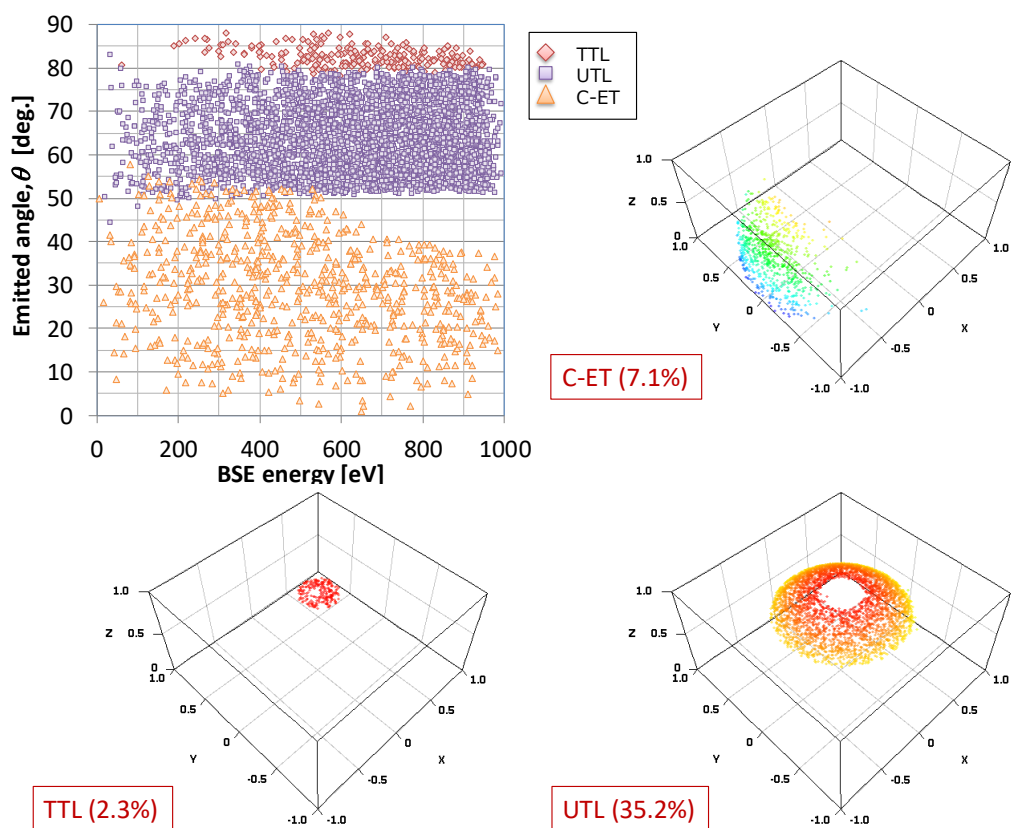


図 3.14 $V_a=1$ kV、 $WD=15$ mm の BSE のアクセプタンス図と方位分布

WD=20 mm の条件で得られる SE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.15 に示す。74.4%もの SE が Chamber-ET 検出器に到達し、方位角分布が対称となる。これは UTL 検出器と試料の間に拡がっている電位が強くなるため、Chamber-ET 検出器の設置方向とは反対の方向に、低角で放出された SE ですら Chamber-ET 検出器の方向に軌道が曲げられ、ほぼ全方位的に SE が Chamber-ET 検出器に到達するためである。残りの SE のうち 9.4%が UTL 検出器に到達するが、TTL 検出器には SE は到達しない。Chamber-ET 検出器のシンチレータに印加している +10 kV が作る UTL 検出器と試料の間に浸み出してくる電位は、Chamber-ET 検出器とは反対方向に試料表面から放出された SE を、Chamber-ET 検出器に導くことが可能となる。Chamber-ET 検出器と反対側に放出された SE のうち、一部浸み出した電界がまだ弱くて曲がりきれずに UTL 検出器に到達する。UTL 検出器に到達していない 45° 以下の SE は、Chamber-ET の設置方向とは逆の方向に放出された SE であり、最終的には試料室内壁に衝突する。試料に凹凸がある場合の SEM 像のコントラストは、WD=10 mm や 15 mm と同じ傾向にはあるものの、凹凸の効果は減少すると考えられる。

WD=20 mm の条件で得られる BSE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.16 に示す。1.5%が TTL 検出器で、21.2%が UTL 検出器に光軸に対して対称的に到達する。一方、8.7%の BSE が Chamber-ET に非対称的に到達する。WD=15 mm と同じく、Chamber-ET 検出器の収集効率は、立体角が大きくなった分、収集効率は向上する。一方、WD が長くなった分立体角が小さくなる TTL 検出器や UTL 検出器の収集効率は、WD=15 mm よりも減少する。BSE の収集効率を合計すると 31.4%となるが、残りの検出器に到達しない 68.6%の BSE は、試料室内壁に衝突して SE₃ を発生する。これらの SE₃ の少なくとも半分程度(34.3%)は Chamber-ET で検出できるので、図 3.13 の Chamber-ET 検出器の SE の収集効率 74.4%と比較すると、43.0%(34.3%+8.7%)となり、WD=15 mm と比較すると SE が多くなり SE の情報が主体となるが、依然として BSE の情報が混在する。UTL 検出器の SE と BSE の混在の傾向は、WD=15 mm と同様である。

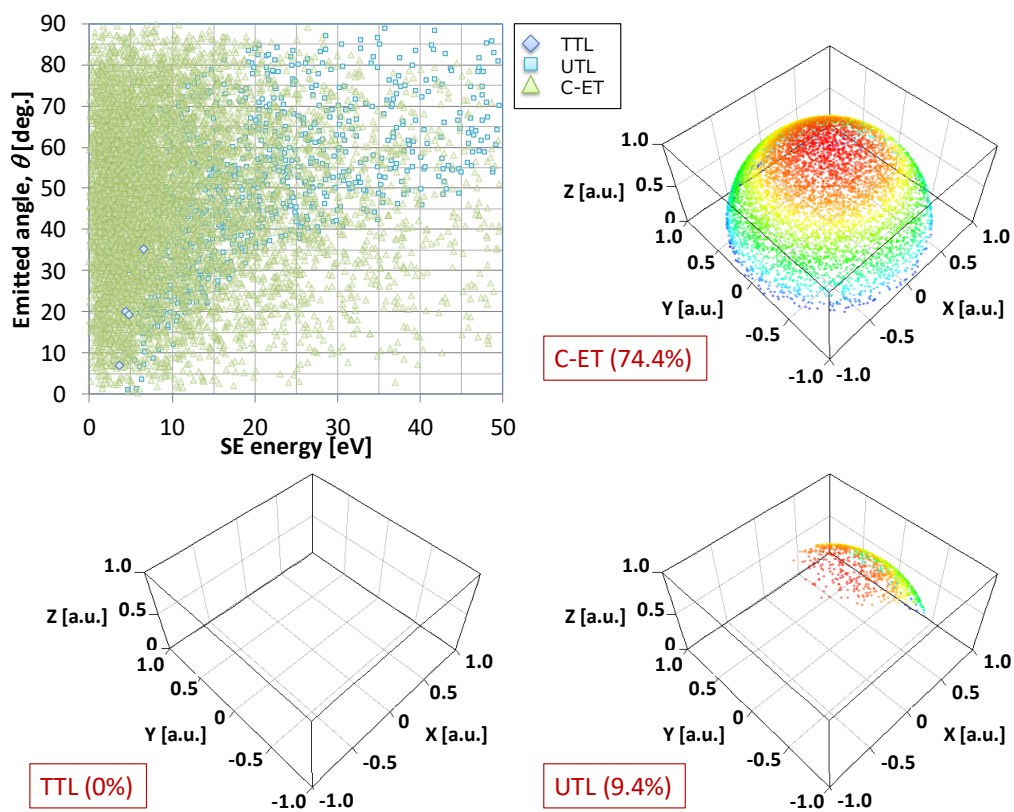


図 3.15 $V_a=1$ kV、 $WD=20$ mm の SE のアクセプタンス図と方位分布

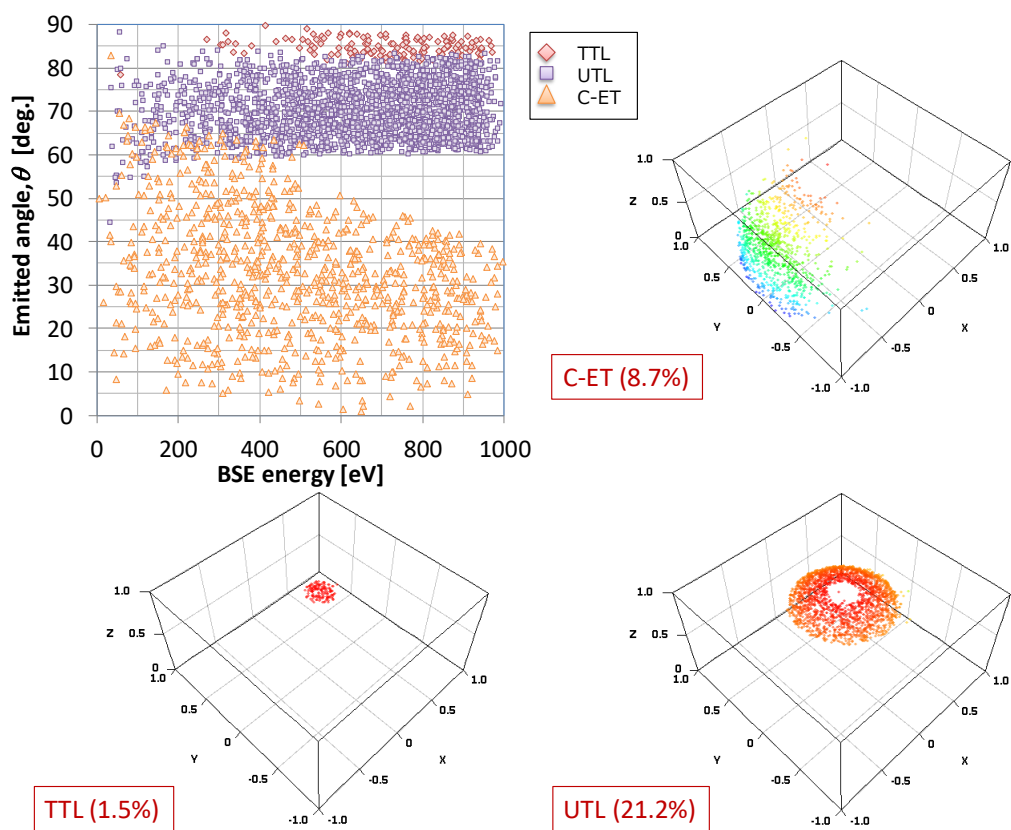
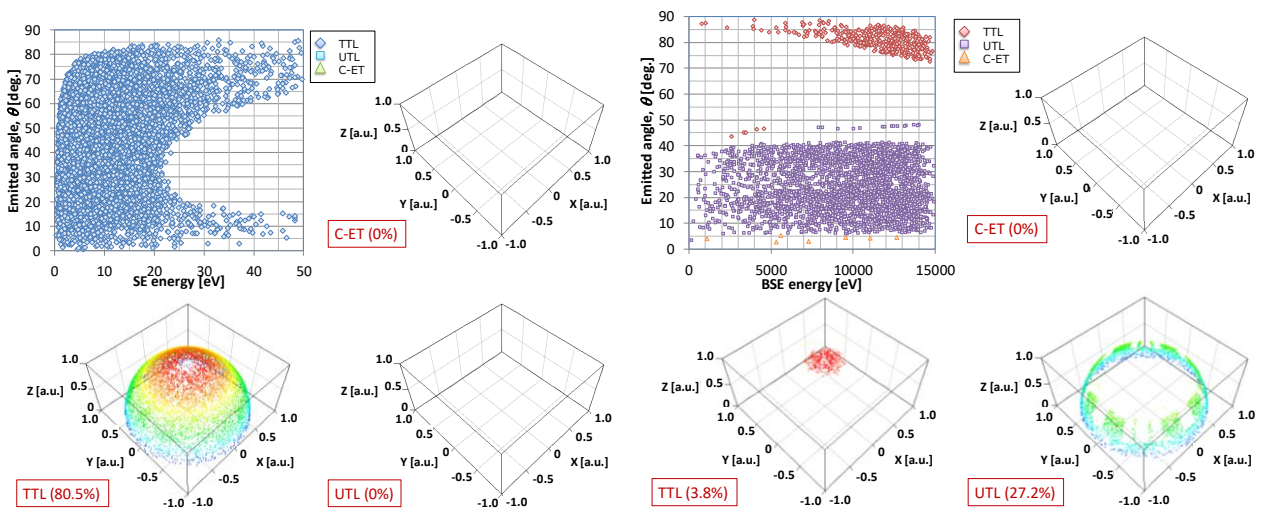


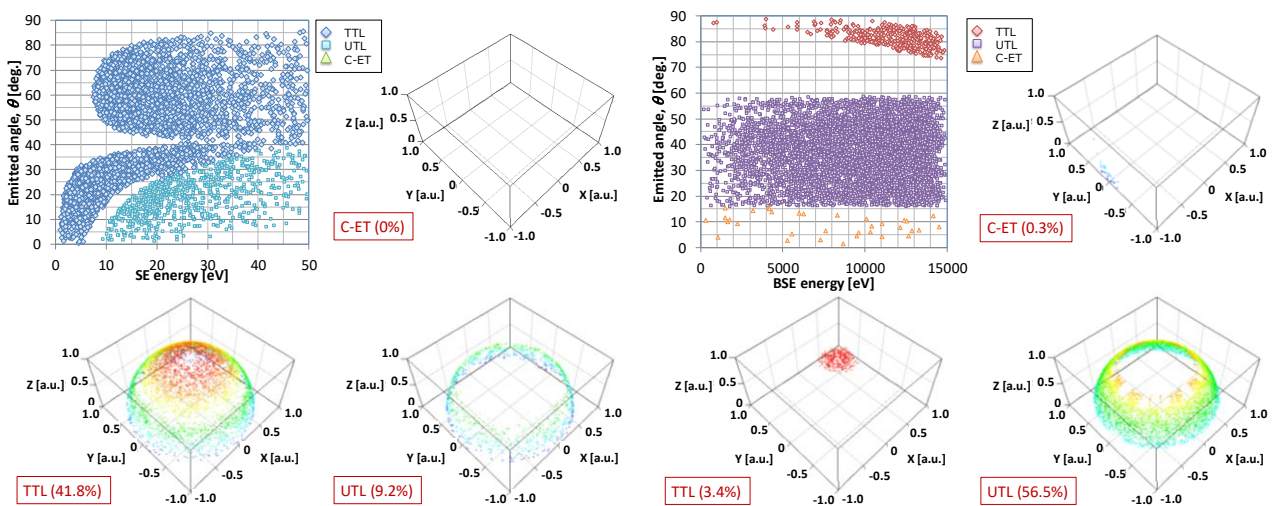
図 3.16 $V_a=1$ kV、 $WD=20$ mm の BSE のアクセプタンス図と方位分布

3.3.2. 加速電圧 15 kV の場合

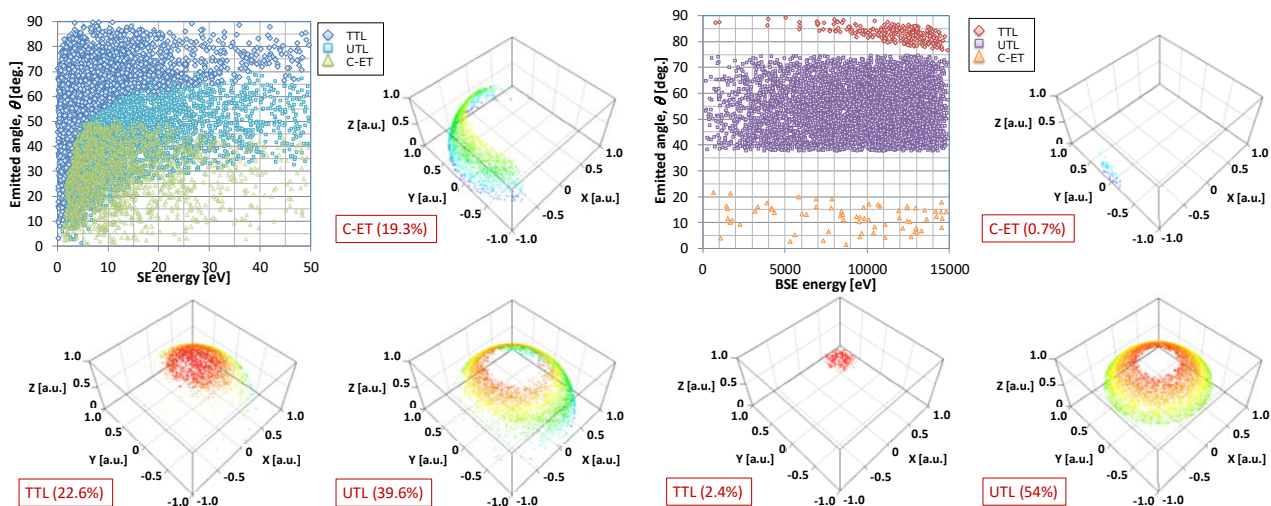
加速電圧が 15 kV のときに得られる $WD=3\sim 20$ mm の SE と BSE のアクセプタンス図と、それぞれの検出器の方位角分布と収集効率を図 3.17 に示す。加速電圧を 15 kV にしても、1 kV と比較して大きく傾向は変わらない。ただし、表 3.1 に示したように 15 kV ではレンズ励磁が強くなるため、磁場レンズの影響が強くなること、BSE のエネルギーが高くなるため、Chamber-ET 検出器からの電界の影響を 1 kV よりも受けないこと、による違いがある。以下相違点について説明する。



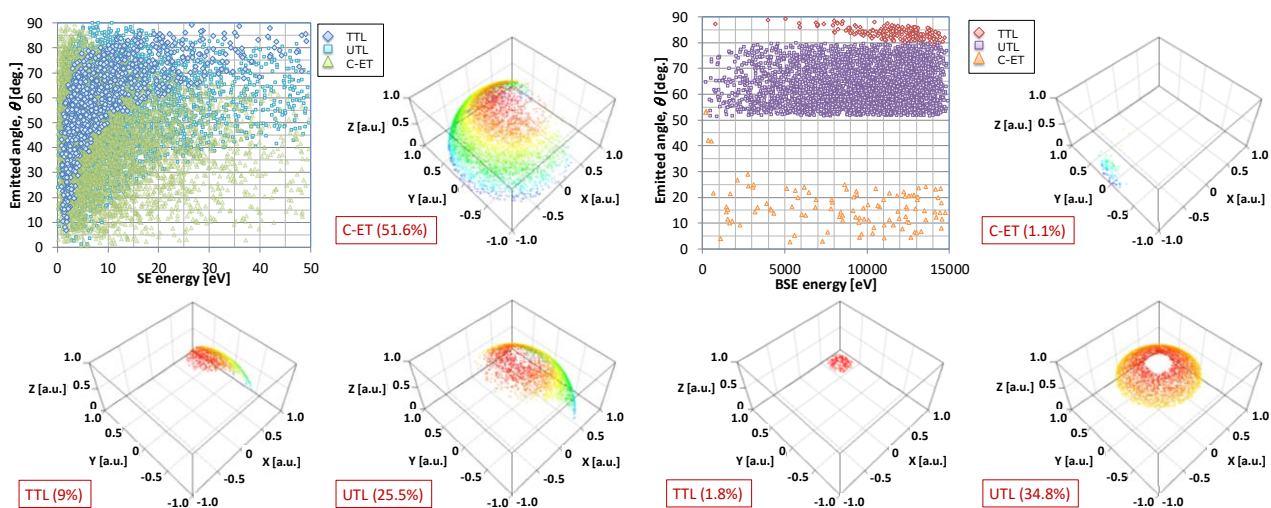
(a) $WD=3$ mm の SE と BSE のアクセプタンス図と方位分布



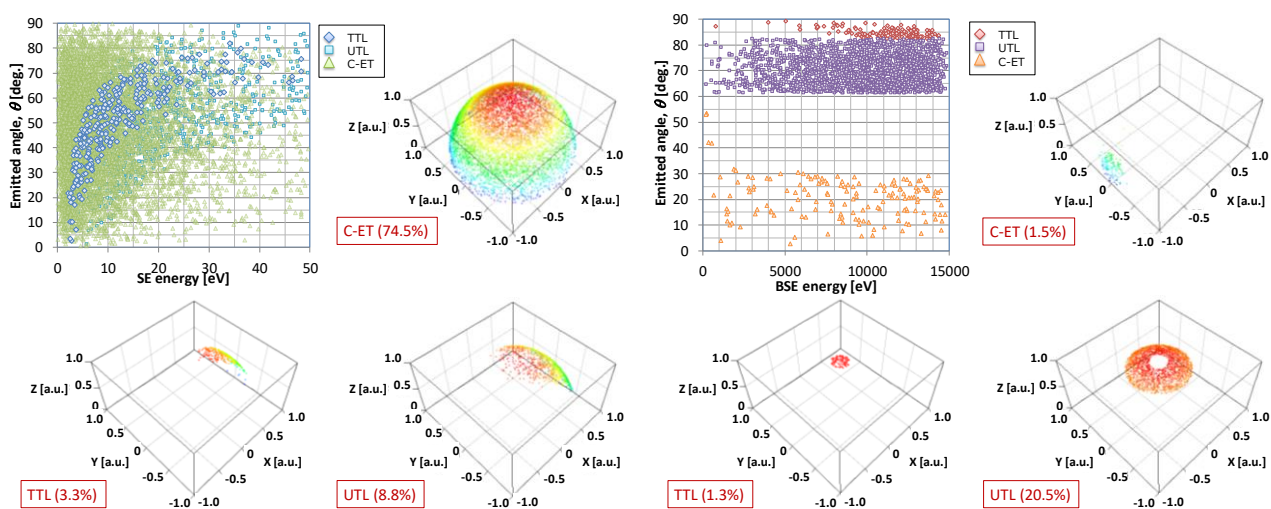
(b) $WD=5$ mm の SE と BSE のアクセプタンス図と方位分布



(c) WD=10 mm の SE と BSE のアクセプタンス図と方位分布



(d) WD=15 mm の SE と BSE のアクセプタンス図と方位分布



(e) WD=20 mm の SE と BSE のアクセプタンス図と方位分布

図 3.17 $V_a=15$ kV の各 WD での SE と BSE のアクセプタンス図と方位分布

SE で $WD=3\text{ mm}$ 、 5 mm (図 3.17a, b)のアクセプタンス図は、 1 kV とは大きく異なる。UTL 検出器での収集効率や方位角分布を 1 kV と 15 kV で比較するとほぼ同じのため、基本的に対物レンズ内部に引き込んでいる SE 量は変わらないと考えて良い。一方、ライナー電極の電圧は 8 kV で同じであるが、レンズ励磁が強くなったことにより、わずかだった試料上の磁場の漏れも相対的に強くなる。そのためローレンツ力により、SE 軌道を光軸上に向ける効果が強くなる。対物レンズの磁場内を何度も回転しながら TTL 検出器方向に引き上げられる SE が、磁場を通り抜けたあとの磁場、電場フリーの空間内でフォーカスする位置は、SE エネルギーに依存して変化する。これによって、TTL 検出器に到達する SE のエネルギー範囲が変化する。この効果は静電レンズでは見られない。結果として、例えば $WD=5\text{ mm}$ で収集効率が 48.3% から 41.8% に減っているのは、SE エネルギー分布(図 3.3a)で最も密度が高い数 eV の SE が TTL 検出器に到達しないためである。

BSE では、Chamber-ET 検出器に到達する BSE が 1 kV と比べると少ない(図 3.17a-e)。Chamber-ET 検出器から漏れ出している電位の最大値は 10 kV であるから、 1 kV と 15 kV の BSE で比較すれば、軌道が検出器に近づくに従って、 1 kV の BSE の方が、Chamber-ET 検出器に引き込まれる割合は多くなる。また、UTL 検出器に到達する BSE の角度範囲や収集効率は、SE と同様、 1 kV も 15 kV も大きく変わらない。従って SE と同様、対物レンズ内に引き込んでいる BSE の量は変わらないと考えて良い。一方、 $WD=3\text{ mm}$ 、 5 mm では、TTL 検出器に到達する BSE のエネルギーや角度範囲が異なる。基本的に一次電子を試料にフォーカスする作用を考えれば、一次電子に近いエネルギーを持つ BSE のアクセプタンスの加速電圧の依存性はないように考えられる。しかし実際は、一次電子のフォーカス作用は角度 1° 以下(おおよそ $5\sim 15\text{ mrad}$ の範囲)で議論され、また、BSE は広いエネルギー分布(図 3.3b)を持つ。そのため、アクセプタンスを検討するような大きな角度や広いエネルギー範囲では、対物レンズの球面収差によってカラム内でのフォーカス位置が大きく変わる。 70° で放出された 1 keV と 15 keV の BSE の軌道シミュレーション結果を図 3.18 に示す。同じ角度で放出された BSE でも、試料側にレンズ主面がある静電場が効く場合(1 keV)と、TTL 検出器側にレンズ主面がある磁場が効く場合(15 keV)では、フォーカス点も変わり、結果として 1 keV の BSE は TTL 検出器に到達するが、 15 keV の BSE は到達しないことが分かる。

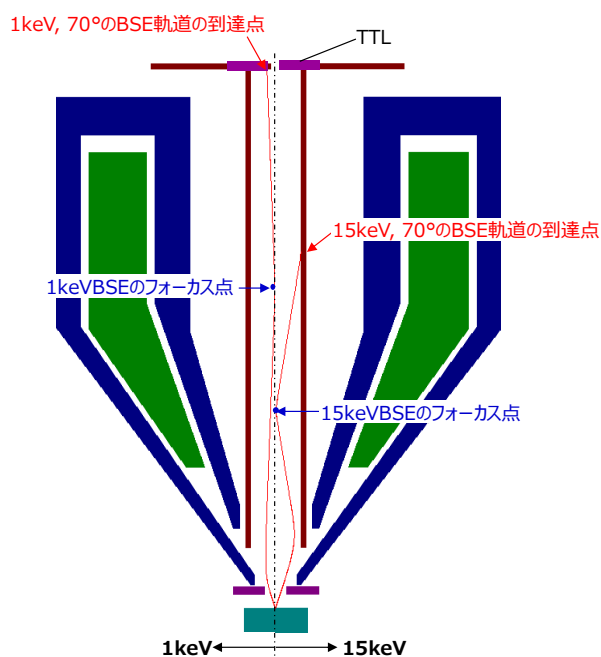


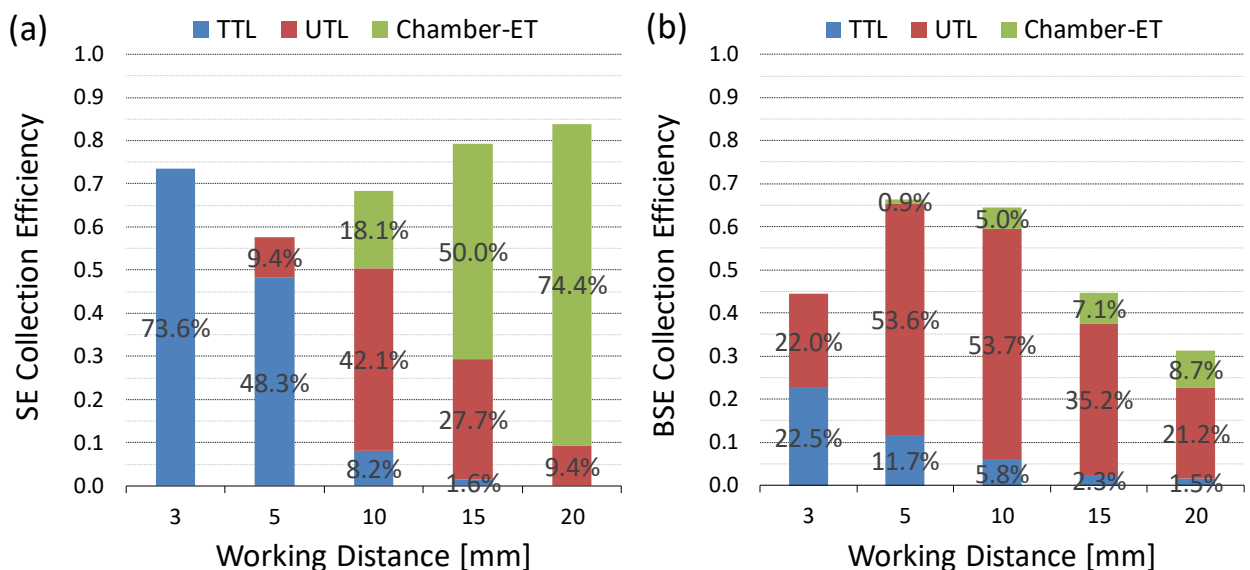
図 3.18 70° 放出された 1 keV と 15 keV の BSE の軌道比較

3.4. コントラストに影響を与えるその他の要素

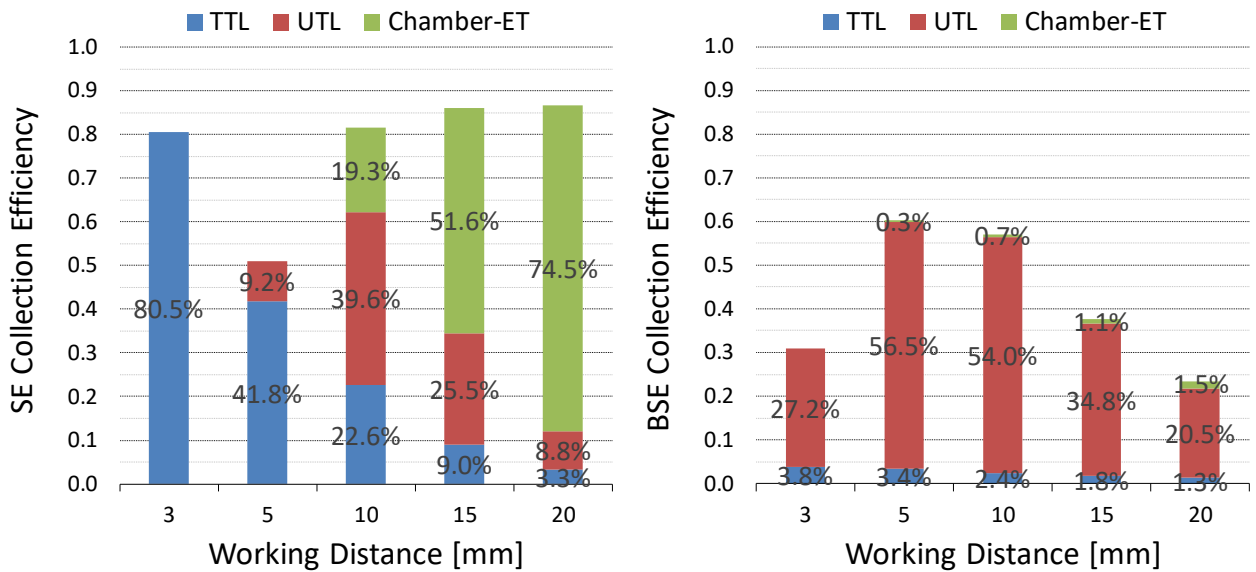
アクセプタンスや方位分布により、検出器に到達する SE や BSE のエネルギーや角度の情報を得ることができる。一方、収集効率に関しては、あくまで検出器に到達した SE と BSE の数しか議論していない。図 3.19 に 1 kV、15 kV、各 WD で計算した収集効率の比較を示す。収集効率の比較で言えば、TTL 検出器と Chamber-ET 検出器の BSE の収集効率を除き、1 kV も 15 kV も同じ傾向を示す。WD が短い条件ではまた、それぞれの検出器に、SE と BSE が双方到達している。例えば WD が短い 3~5 mm では、TTL 検出器が SE 検出器として主であり、WD が長い 15~20 mm では、Chamber-ET 検出器が SE 検出器として主である。1 kV の WD=3 mm では、BSE が SE の 1/3 程度、TTL 検出器に到達している。UTL 検出器に到達する SE、BSE は WD=10 mm で最大となり、その到達量は SE も BSE も同程度である。しかしながら、収集効率だけで SEM 像のコントラストは議論できない。実際には検出器のエネルギー感度や、試料の SE/BSE 収量も考慮に入れる必要がある。

更に、BSE が検出器以外の場所に衝突した場合、一次電子が試料に衝突して SE や BSE が放出される現象と同じように、SE と同じエネルギー分布の SE₃ が放出される。3.3 節で述べたが、ライナー電極内に衝突する SE や BSE によって生成される SE₃ は、ライナー電極内の無電界空間にあるため、TTL 検出器には 50 eV 以下の低いエネルギーのまま衝突する。以下で詳細を説明するが、シンチレータはこのような低いエネルギーには感度がないため、TTL 検出器に到達する SE₃ の影響は考慮しなくて良い。一方、Chamber-ET に到達する SE₃ の影響は、3.3 節で述べたとおり少なくはない。ただし、3.3 節の説明は、単に収集効率だけで議論したものであって、試料室内壁の SE 収量を考慮していない。

実際の SEM 像のコントラストをより正確に議論するために、エネルギー感度や SE/BSE 収量、SE₃ の影響について、以下に検討する。



(a) 加速電圧 1 kV の場合



(b) 加速電圧 15 kV の場合

図 3.19 Va=1 kV、15 kV、各 WD での SE と BSE の収集効率の比較

3.4.1. 検出器のエネルギー感度と SE/BSE 収量

検出器に到達した後に信号として出力されるかどうかは、検出器のエネルギー感度も考慮に入れなければならない。ここで、TTL 検出器と Chamber-ET 検出器はシンチレータと光電子増倍管で構成される検出器を、UTL 検出器は半導体検出器(Solid-State detector, SSD)を考える。それぞれの検出器の感度を表 3.2 に示す。

シンチレータに入射する電子のエネルギーが 8 keV 以上の場合、入射した電子 1 個に対して 1 個のパルスが出力されるため(Agemura *et al.* 2001)、これ以上のエネルギーの場合、エネルギー感度は 1 である。入射するエネルギーが 8 keV から減少すると、エネルギーに比例してエネルギー感度は減少する(Baumann and Reimer 1981)。TTL 検出器のシンチレータは、ライナー電極と同電位に配置されている。WD=3~1 mm では +8 kV の電位となり、一次電子をフォーカスするためにライナー電極電圧をオフにする WD=20 mm では、接地電位となる。従って、WD=20 mm ではエネルギーの小さい SE は TTL 検出器では検出できず、エネルギー感度はゼロとなる。WD=3~15 mm では、TTL 検出器には最大 9 keV($V_a=1$ kV)、23 keV($V_a=15$ kV) で BSE が衝突する一方、WD=20 mm では最大 1 keV($V_a=1$ kV)、15 keV($V_a=15$ keV)となる。そのため、 $V_a=1$ kV、WD=20 mm では、エネルギー感度は $1/9(0.111)$ に低下する。Chamber-ET 検出器のシンチレータには常に 10 kV が印加されているため、エネルギー感度は変化しない。

SSD 検出器は、エネルギーの低い SE には全く感度がない。UTL 検出器として使用される条件では、一次電子のフォーカス作用に影響するため、TTL 検出器のように検出器入射面に +8 kV のバイアスを印加することができない。SSD 検出器のエネルギー感度(1 kV 時の 0.2)は、Šakić らによって示されている結果を採用した(Šakić *et al.* 2010)。

表 3.2 各検出器のエネルギー感度

Va [kV]	Signal	WD [mm]	Detector sensitivity		
			TTL (Scintillator)	UTL (SSD)	C-ET (Scintillator)
1	SE	3-15	1	0	1
		20	0	0	1
	BSE	3-15	1	0.2	1
		20	0.111	0.2	1
15	SE	3-15	1	0	1
		20	0	0	1
	BSE	3-15	1	1	1
		20	1	1	1

収集効率は、一次電子 1 個が試料に入射した後、1 個の SE あるいは BSE が試料から放出されることを前提として計算している。実際には、加速電圧や材料によって、試料から放出される SE/BSE 量は変化する (Joy 1995)。例えば、試料がアルミニウムの場合の SE 収量と BSE 収量を表 3.3 に示す。

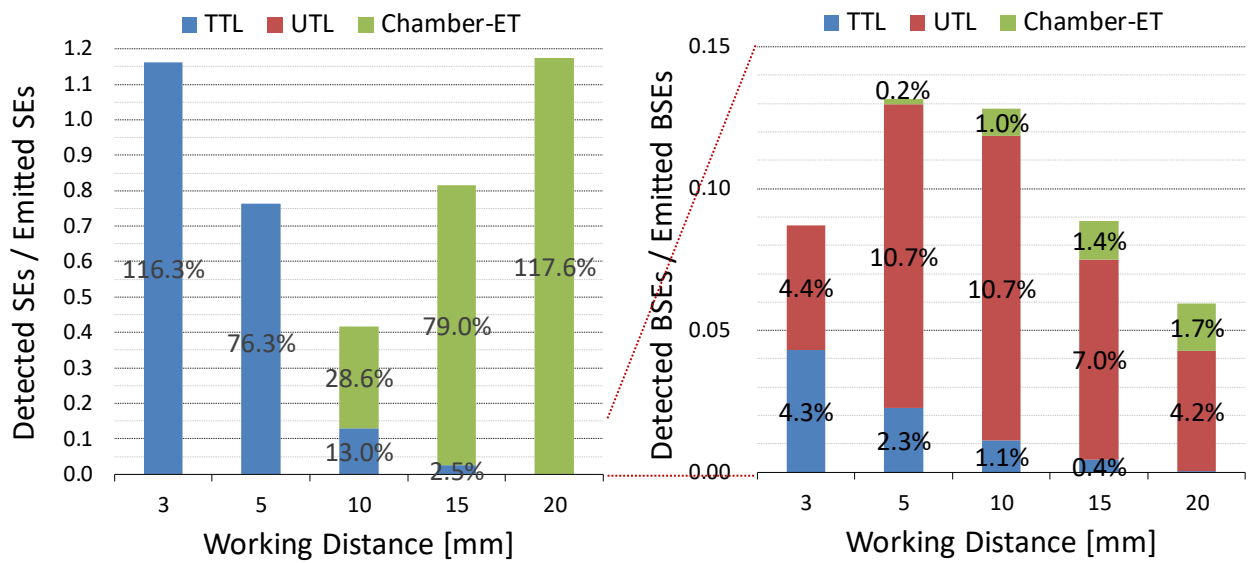
表 3.3 アルミニウムの SE/BSE 収量

Va [keV]	SE yield	BSE yield
1	1.580	0.192
15	0.184	0.150

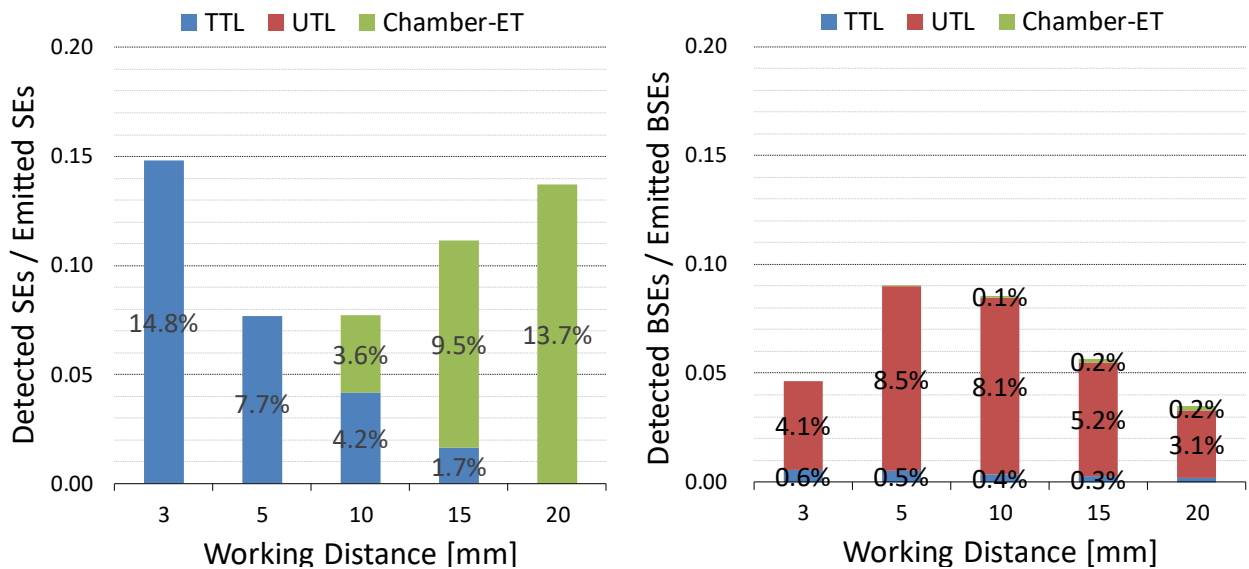
図 3.20 に、エネルギー感度とアルミニウムの SE/BSE 収量を考慮した場合の、1 kV、15 kV、各 WD で計算した、各検出器で検出できた SE と BSE の数(検出効率)の比較を示す。図 3.20(a)の WD=3 mm、20 mm で 100%を超えるのは、アルミニウムの SE 収量が 1.580 と 1 より多いことに起因する。UTL 検出器が SE のエネルギーに感度がないため、TTL 検出器と Chamber-ET 検出器のみが SE 検出器として機能する。その検出量は、TTL 検出器は WD が短い方が多く、Chamber-ET 検出器は WD が長い方が多い。ここで、WD が短い方が分解能は高く、WD が長くなると SEM の空間分解能が劣化することは留意が必要である。また、TTL 検出器は軸対称で SE を検出するのに対し、Chamber-ET 検出器は検出器配置方向に放出された SE を多く検出する(WD=20 mm では全方位の情報を得ているが、実際には図 2.9 に示した検出器配置に依存した照明効果により凹凸情報が得られる)。一方、WD=5~10 mm で検出量が最小となるため、この WD 範囲で SE 検出器として両検出器を使用するのは適さない。更に、TTL 検出器、Chamber-ET 検出器共に、BSE の検出量が SE の検出量よりはるかに少ないため、両方とも SE 検出器として機能すると言ってよい。ただし、Chamber-ET 検出器に関しては、次節で説明する SE₃の影響も考慮が必要である。また、TTL 検出器に関しても、WD が短い条件では数%の BSE が到達するため、シンチレータの前段にエネルギーフィルターを搭載し(例えば図 1.1)、SE を追いつ返して BSE だけがシンチレータに到達するようにすれば、BSE 検出器としても機能させることができる。UTL 検出器は BSE 検出器としてのみ機能する。その検出角度範囲を表 3.4 に示す。一方、最近の SSD 検出器は径方向に分割することも可能なため(Šakić *et al.* 2010)、更に細かい角度範囲での

調整も可能となる。また、円周方向にも分割することが可能なため(Šakić *et al.* 2010)、例えば一方向に放出された BSE だけを検出することで凹凸の情報を得ることも可能となる。

SE の検出に関しては、TTL 検出器は短 WD、Chamber-ET 検出器は長 WD に最適化された検出器であり、中間の WD(10 mm 前後)では SE の検出量も方位も取り合いとなる。また、ブースター電極からの電位の漏れも Chamber-ET からの電位の漏れもお互い弱い条件のため、検出量そのものも下がってしまう。これは今まで明確に示されていなかった知見である。従って、例えば X 線分析のために EDS(Energy Dispersive Spectrometer)検出器を用いた分析を行う場合は WD=10 mm 前後に設定することが多かったが、この条件で得られる SE による SEM 像は、検出量が下がり、方位の情報も混在した画像であったと考えられる。



(a) 加速電圧 1 kV の場合



(b) 加速電圧 15 kV の場合

図 3.20 $V_a=1$ kV、15 kV、各 WD での SE と BSE の検出効率の比較

表 3.4 UTL 検出器が検出できる BSE の放出角度範囲

WD [mm]	最小 [°]		最大 [°]	
	検出器外半径 10 mm		検出器内半径 2.5 mm	
3	5.7		21.8	
5	16.7		50.2	
10	38.7		72.6	
15	52.4		79.1	
20	60.9		82.1	

3.4.2. SE₃の影響

試料から放出された BSE が試料室内壁に衝突した際、そのエネルギーに依存と試料室の材料に依存して SE₃が照射点から放出される。試料室の材料は鋳物に Niめっきを施したものが利用されるため、加速電圧 1 kV と 15 kV の BSE が試料室の鉄に衝突した際に放出される SE₃ 収量は、0.9、0.290 となる (Joy 1995)。ただし、Joy のデータベースには 15 kV のデータは記載されていないため、5 kV の 0.405、30 kV の 0.117 から直線内挿して 0.290 を導出した。本来であれば、試料室内壁に BSE の各点それぞれから 10,000 本の SE₃ 軌道をシミュレーションする必要があるが、衝突点が数千にもなるため、これら全ての衝突点でシミュレーションするのは膨大な時間が必要となる。そのため 50% の SE₃ が Chamber-ET 検出器に到達すると仮定した。以上を考慮した条件で、Chamber-ET の BSE 検出効率を 1 kV、15 kV でそれぞれ再計算すると、図 3.21 のような傾向となる。TTL 検出器と UTL 検出器の検出効率は図 3.20 と同じである。BSE の検出効率を図 3.20 と比較すると、1 kV で約 4 倍、15 kV で約 8 倍の BSE が検出されている。Chamber-ET 検出器の SE と BSE の検出効率を、例えば WD=20 mm で比較すると、SE₃ を考慮する前は 70 倍(1 kV)、61 倍(15 kV)だったが、SE₃ を考慮することで 15 倍(1 kV)、8 倍(15 kV)となる。それでもまだ SE の検出量の方が多いため、長 WD では Chamber-ET 検出器は SE 検出器として機能すると言える。ただし、先に述べたように、SE を効率良くシンチレータに誘導するために、軌道入射部にグリッドを具備して正バイアスを印加している Chamber-ET 検出器も存在する (Konvalina and Müllerová 2006)。このグリッドに負バイアスを印加すると SE は全く検出されないため、BSE 検出器として機能させることも可能である。また、先のグリッドとシンチレータの間に、もうひとつグリッドを設け、先のグリッドには負のバイアスを印加して試料からの SE は追い返し、追加したグリッドに正のバイアスを印加して試料室内壁からの SE₃ を積極的に集めてシンチレータに誘導する検出器も、イスラエルの El-Mul 社が販売している (3Max 検出器、図 3.22)。

以上を考慮した WD に依存した SEM 像コントラストの特徴は、佐藤らの報告にある図 5 に明確に現れている (Sato 2015)。

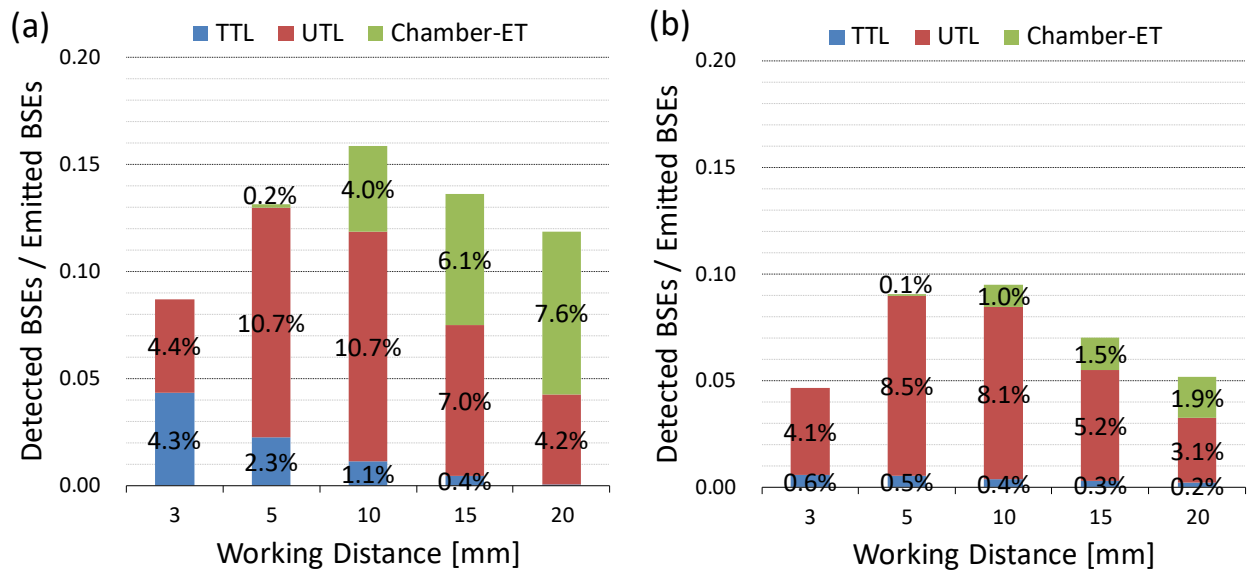


図 3.21 各 WD での SE_3 を考慮した BSE の検出効率の比較、加速電圧 1 kV(a)、加速電圧 15 kV(b)

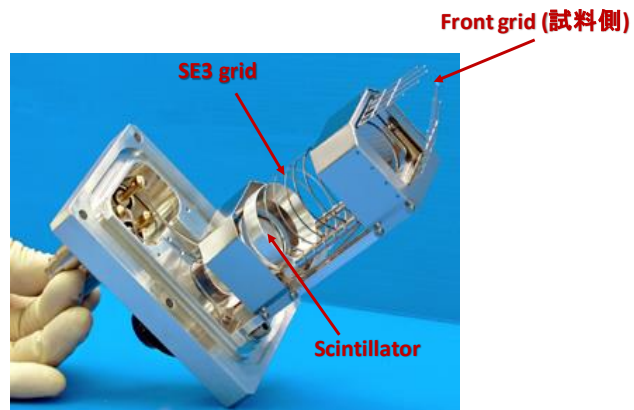


図 3.22 3Max 検出器の外観写真 (El-Mu 社許可による)

3.5. 本章のまとめ

最近の SEM で適用されているブースー光学系に搭載した対物レンズを仮想設計し、TTL 検出器、UTL 検出器、Chamber-ET 検出器に対してアクセプタンス図、方位角分布、収集効率をシミュレーションにより求めた。また、試料の SE/BSE 収量、各検出器の感度、SE₃の影響も考慮し、それぞれの検出器で検出される SE と BSE の検出効率も求めた。その結果として、それぞれの検出器で検出できる SE や BSE のエネルギーや角度、検出量は、対物レンズが発生している磁場・電場に大きく依存し、WD を変えると大きく変化することが明確となった。これらの考察から、これまで曖昧だった、それぞれの検出器に対して、どのような SEM 像を得ることができるのか、またその最適条件を明確に示すことができた。以下にその特徴をまとめる。

- (1) 短 WD では、TTL 検出器は高分解能観察用の SE 検出器として機能するが、軸対称な検出のために凹凸情報は得られにくい。またエネルギーフィルターを設ければ、高角の BSE 検出器としても機能する。長 WD では SE、BSE ともに検出量は微量となり、また Chamber-ET の電場の影響で、SE の検出方位と BSE の検出方位は互いに反対方向となるため、得られるコントラストは複雑となる。
- (2) UTL 検出器は全 WD 範囲で BSE 検出器として機能する。WD を上下することで検出できる角度範囲を変えることができる。また径方向や円周方向に分割できる SSD を採用すれば、更に細かい角度範囲の設定や、凹凸情報を得ることも可能である。
- (3) Chamber-ET は短 WD では BSE 検出器として機能する。長 WD では分解能を要求しない SE 検出器として機能し、検出器配置の影響から凹凸情報を得ることができる。試料室内壁から放出される BSE 起因の SE₃を若干検出するが、SE の検出量の方が多いため SE 検出器と見なして良い。グリッドが装着された Chamber-ET 検出器は、グリッドに負バイアスを印加することで、BSE 検出器としても機能する。

アクセプタンスや収集効率は、分解能のように各製造メーカーが明示しているものではなく、また、対物レンズ磁場、電場、WD の影響は、各製造メーカーの対物レンズや検出系によって大きく変わる。そのため、SEM 像コントラストから材料特性を研究する研究者の立場から考えると、対物レンズの磁場、電場、WD の影響を考えなくてもアクセプタンスや収集効率が判る検出器の開発が望まれる。

一方で、シミュレーションによってそれぞれの検出器で得られる SE や BSE のエネルギーや角度の情報(アクセプタンス)が大きく変わることが示された。これまで、例えば分解能を上げるために WD を短くしていた、あるいは X 線分析をするために EDS 検出器を見込む WD に固定していたと考えられる。しかしながら、得られる SEM 像のコントラストは WD によって大きく解釈が変わり、加速電圧やプローブ電流に並ぶ重要なパラメータであるということが示された。すなわち、アクセプタンスを知ることの重要性が示されたと言える。これらが SEM を利用する研究者に浸透してくれば、各製造メーカー、アクセプタンスの情報がカタログ仕様に掲載する日もそう遠くないかもしれない。

3.A. (補足) 更に SEM 像コントラストの理解を深めるために

3.A.1 Signal-to-Noise Ratio (SNR)

図 3.20 や図 3.21 で示した検出器で検出された SE 数や BSE 数は、厳密に言うとは平均値である。実際には、一次電子も含めて多くの統計過程を経て SEM 像を形成している (Baumann and Reimer 1984)。電子の平均個数とその統計過程を経た分散の平方根を信号対雑音比 (Signal-to-Noise Ratio, SNR) で定義する。SNR を使った検出器の検出効率性能を示す指標として DQE (Detective Quantum Efficiency) が提案されており (Oatley 1985)、DQE を使って SEM の検出器の性能を評価している例もある (Joy *et al.* 1996)。DQE は実際の検出系で得られる SNR_{OUT} と理論 SNR_d との比の二乗で計算できる。そこでまず始めに SNR_d を求めることが重要になる。現在の SEM は画像がデジタル化されており、例えば 1 枚の画像に 512×512 の画素が含まれる。ひとつの画素に一次電子が滞在している時間を τ_d と定義すると、1 画素に含まれる電子の個数 n_p は次式で計算できる (図 3a.1 参照)。

$$n_p = \frac{I_p \cdot \tau_d}{e} \quad (3a.1)$$

ここで、 I_p はプローブ電流、 e は素電荷 (1.602×10^{-19} C) である。一次電子はピクセル間に相関がなく独立であればポアソン分布に従い、その分散は n_p となるから、一次電子の SNR_p は次式で計算できる (Joy *et al.* 1996, Agemura *et al.* 2001)。

$$SNR_p = \frac{n_p}{\sqrt{n_p}} = \sqrt{\frac{I_p \cdot \tau_d}{e}} \quad (3a.2)$$

ここで、 I_p はプローブ電流、 e は素電荷 (1.602×10^{-19} C) である。 SNR_p は理想的に一次電子が全て検出器で検出されたときの SNR であるが、実際は図 3a.2 で示すようにいくつかの過程を経て検出器で検出される。

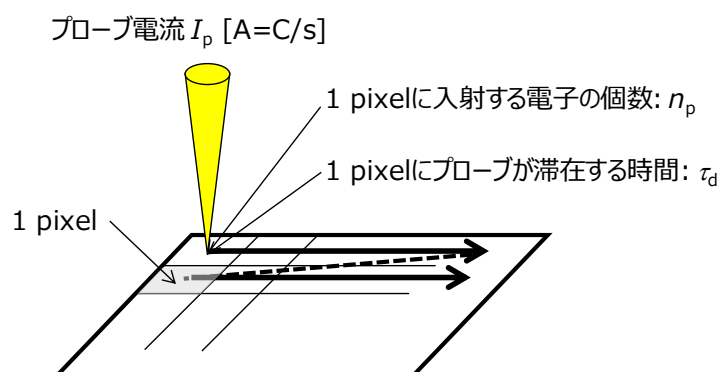


図 3a.1 ー 1 pixel あたりの一次電子の個数の計算するための SEM 像形成原理図

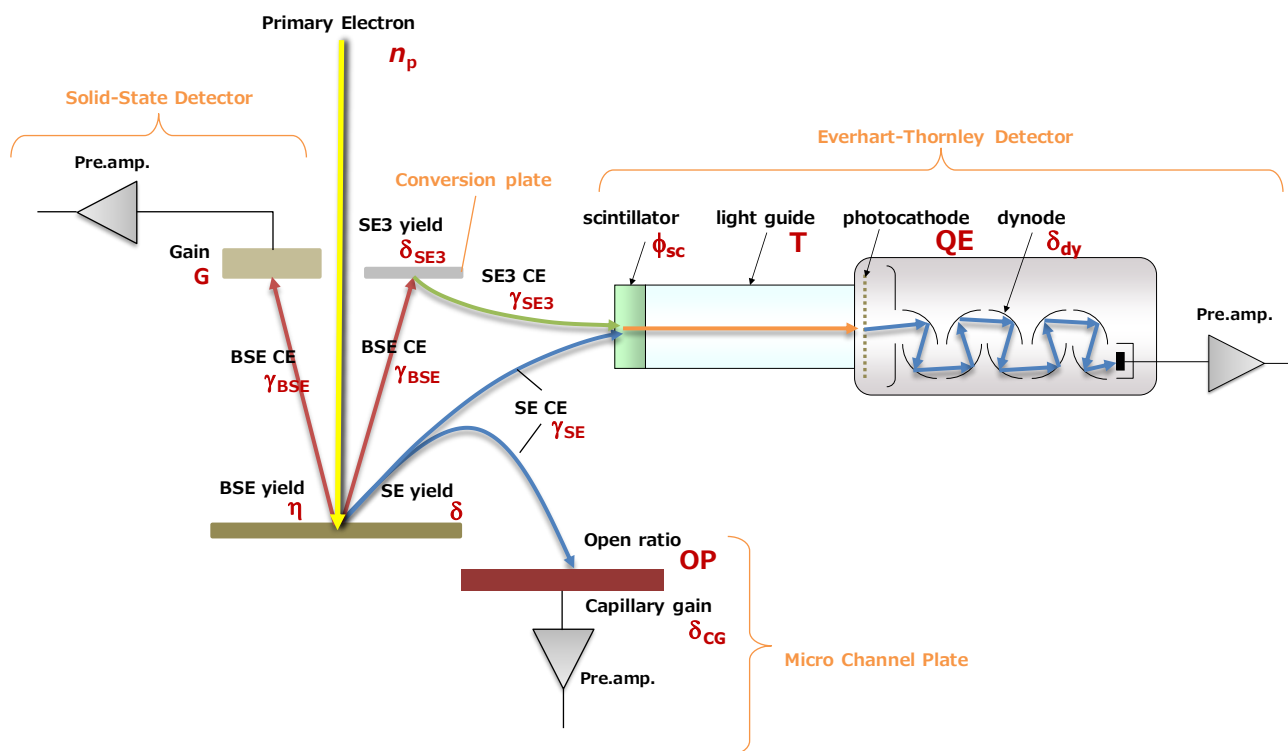


図 3a.2 ー SE や BSE の検出過程

まず検出器に到達する SE や BSE の個数で SNR を検討する。SE 収量を δ 、BSE 収量 η を、SE と BSE が直接検出器で検出できたときと仮定したときの収集効率をそれぞれ γ_{SE} 、 γ_{BSE} とする（この場合 BSE は変換板部分で直接検出されると仮定）。また BSE が変換板に衝突した際、変換板から放出される SE₃ 収量を δ_{SE3} 、SE₃ の収集効率を γ_{SE3} とする。この条件で検出器に到達する SE 数と BSE 数を計算すると、次式で表される。

$$n_d = \begin{cases} n_p \cdot \delta \cdot \gamma_{SE} & \text{for SE} \\ n_p \cdot \eta \cdot \gamma_{BSE} & \text{for BSE} \\ n_p \cdot \eta \cdot \gamma_{BSE} \cdot \delta_{SE3} \cdot \gamma_{SE3} & \text{for BSE(SE}_3\text{)} \end{cases} \quad (3a.3)$$

ここで、検出器に到達する電子数の分散は n_d にはならない。プロセスで統計的な変動があり、それらを考慮に入れる必要がある。表 3a.1 に各プロセスでの統計的な変動要因を整理する。

表 3a.1 各プロセスでの統計変動要因

プロセス	統計分布	平均値	分散
一次電子	ポアソン分布	n_p	n_p
SE 収量	ポアソン分布	δ	δ
BSE 収量	二項分布	η	$\eta(1-\eta)$
SE 収集効率	二項分布	γ_{SE}	$\gamma_{SE}(1-\gamma_{SE})$
BSE 収集効率	二項分布	γ_{BSE}	$\gamma_{BSE}(1-\gamma_{BSE})$
変換板の SE ₃ 収量	ポアソン分布	δ_{SE3}	δ_{SE3}
SE ₃ の収集効率	二項分布	γ_{SE3}	$\gamma_{SE3}(1-\gamma_{SE3})$

表 3a.1 に整理した統計過程を考慮すると、検出器に到達した電子数 n_d から計算する SNR_d は次式で計算することができる。

$$SNR_d = \frac{1}{r} SNR_p \neq \frac{n_d}{\sqrt{n_d}} \quad (3a.4)$$

ここで r は分散を決めるファクターで、 m 個の統計過程を経るとし、 i 番目の平均値 n_i の分散を $v(n_i)$ とすれば、 r は次式で表現される。

$$r^2 = 1 + v(n_1) + \frac{v(n_2)}{n_1} + \dots + \frac{v(n_m)}{n_1 \dots n_{m-1}} \quad (3a.5)$$

表 3a.1 を (3a.5) 式に代入すると、 SNR_d は、

$$SNR_d = \begin{cases} \sqrt{\frac{n_d}{\left(1 + \frac{1}{\delta\gamma_{SE}} \left(1 + \frac{1}{\varepsilon}\right)\right)}} & \text{for SE} \\ \sqrt{\frac{n_d}{\left(1 + \frac{1}{\varepsilon}\right)}} & \text{for BSE} \\ \sqrt{\frac{n_d}{\left(1 + \frac{1}{\varepsilon}\right) + \delta_{SE3}\gamma_{SE3}}} & \text{for BSE(SE}_3\text{)} \end{cases} \quad (3a.6)$$

で計算できる。 ε は検出器の特性で決まる因子で検出器内部のゲインに関する。一次電子と同じように、 $SNR_d \propto \sqrt{n_d}$ の関係は成立しているが、後段の統計過程の影響を受けることが判る。一例として、BSE を直接検出する場合と、変換板を利用する場合で SNR を計算した結果を表 3a.2 で比較する。ただし検出器特性を決める ε は無視する (ゲインが十分大きいとする)。検出器に到達する電子数は変換板検出の方が多いが、実際に SNR で比較すると、直接検出した方が SNR は大きくなる。 $SNR_d \propto \sqrt{n_d}$ の関係から、変換板検出で検出した電子数は、実効的には 3.5 個と見積もることができる。たとえば変換板での SE_3 収量が 100 で、その収集効率が 100% でも、直接検出の SNR よりも必ず小さい値となる。従って 3.4.2 節で検討した SE_3 の影響は、実効的には更に小さくなると考えられる。

表 3a.2 BSE の直接検出と変換板検出の SNR の比較

プロセス	記号	直接検出	変換板検出
一次電子	n_p	100	100
BSE 収量	η	0.2	0.2
BSE 収集効率	γ_{BSE}	0.3	0.3
変換板の SE_3 収量	δ_{SE3}	–	2
SE_3 の収集効率	γ_{SE3}	–	0.7
検出に到達する電子数	n_d	6	8.4 (実効3.5)
信号対雑音比	SNR_d	2.449	1.871

検出器のゲインに関する因子 ε も、図 3a.2 に記載したように、半導体検出器、ET 検出器、MCP でそれぞれ統計過程があり、表 3a.3 のような統計的な変動を受ける。(3a.5) の関係を用いて ε を計算すると、

$$\frac{1}{\varepsilon} = \begin{cases} \frac{F(E_{in})}{G(E_{in})} & \text{for Solid-State Detector} \\ \frac{1}{\phi_{sc}(E_{in}) \cdot T \cdot QE} \left(\phi_{sc} \cdot T + \frac{1}{\delta_{dy} - 1} \right) & \text{for ET Detector} \\ \frac{1}{OP} \cdot \frac{\delta_{CG}}{\delta_{CG} - 1} & \text{for MCP} \end{cases} \quad (3a.7)$$

となる。ここで F はファノ因子である。例えば Si のフォトダイオードを半導体検出器として採用した場合、一個の電子-正孔対を生成するのに必要なエネルギーは 3.61 eV であるから、入射した電子のエネルギーが 10 keV とすれば、理論ではゲインは 2770 となる。従って分散も同じく 2770 になるが、実際の分散は、この 2770 にファノ因子を掛けたものになる。ファノ因子は Si に対しては 0.08~0.16 で示されている (Knoll 1989)。また、シンチレータも、入射する電子のエネルギーに依存して出力する光子数が変わることは 2.2.5 節で述べた。半導体検出器や ET 検出器では、ゲインは入射電子のエネルギーに比例するから、入射エネルギーが低くなると ε が小さくなっていくため、(3a.6)式で計算する SNR にも影響する。Agemura(2001)らは、次節で説明する実験による SNR の測定によって、入射電子のエネルギーが 8 kV 以下になると、除々に SNR が低下し始めることを示している。MCP の入力には入射電子を増幅するキャピラリーがあり、有効検出面はキャピラリーの開口率で決まる。その後の増幅は、PMT のダイノードと同じように考えて良いのは、2.2.5 節で述べたとおりである。

表 3a.3 検出器の内部ゲインに関する統計変動要因

プロセス	統計分布	平均値	分散
半導体検出器のゲイン	ポアソン分布	G	G
蛍光体のゲイン	ポアソン分布	ϕ_{sc}	ϕ_{sc}
ライトガイド透過率	二項分布	T	$T(1-T)$
PMT 量子効率	ポアソン分布	QE	QE
PMT ダイノード SE 収量	ポアソン分布	δ_{dy}	δ_{dy}
MCP 開口率	二項分布	OP	$OP(1-OP)$
MCP キャピラリーゲイン	ポアソン分布	δ_{CG}	δ_{CG}

以上、SEM の SNR の理論的な考察を行った。重要なことは、(3a.7)式で計算できる SNR は、特に後段の統計過程の影響が少ない。言い換えれば、SNR を悪くする要素はあっても、大幅に改善させる要素は少ない。従って、SEM で SNR を上げたい場合、(3a.2)式で示したとおり、一次電子のプローブ電流を増やすか、1pixel に滞在するビームの時間を長くするか(走査スピードを遅くする、あるいは画像積算を行うなど)でしか対応できない。ただし、統計モデルはポアソン分布に従うので、将来的には一次電子の統計過程が推定できれば、プローブ電流や滞在時間を増やさなくても SNR が改善できるかもしれない。

3.A.2 コントラストと SNR の関係

Rose(1952)は、人間の目で認識できる信号の強さは、ノイズの 5 倍以上必要であると説明している (Rose criterion と呼ぶ)。注目する 2ヶ所からの信号を S_1 と S_2 とすると、コントラスト C は $(S_2 - S_1)/(S_2 + S_1)$ で定

義できるから、Rose critrion を用いて以下の関係を導くことができる。

$$C = \frac{S_2 - S_1}{S_2 + S_1} = \frac{\Delta S}{2S} \geq \frac{5 \times N}{2S} = \frac{(5/2)}{(S/N)} \approx \frac{(5/2)}{SNR_d} \quad (3a.8)$$

(3a.2)式、(3a.4)式を(3a.8)式に代入すると、

$$\frac{I_p \cdot \tau_d}{e} \geq 6.25 \times \left(\frac{r}{C}\right)^2 \quad (3a.9)$$

を得ることができる。材料表面あるいは内部の微小な SE 収量や BSE 収量の差は、SEM 画像のグレーレベルの差として現れ、コントラストは実験的に導けるが、これまで、一次電子や SE/BSE 収量、検出系のパラメータと関連させることができなかつた。(3a.9)式の関係によって定量的にコントラストを評価することができる。

3.A.3 実験による SNR の求め方

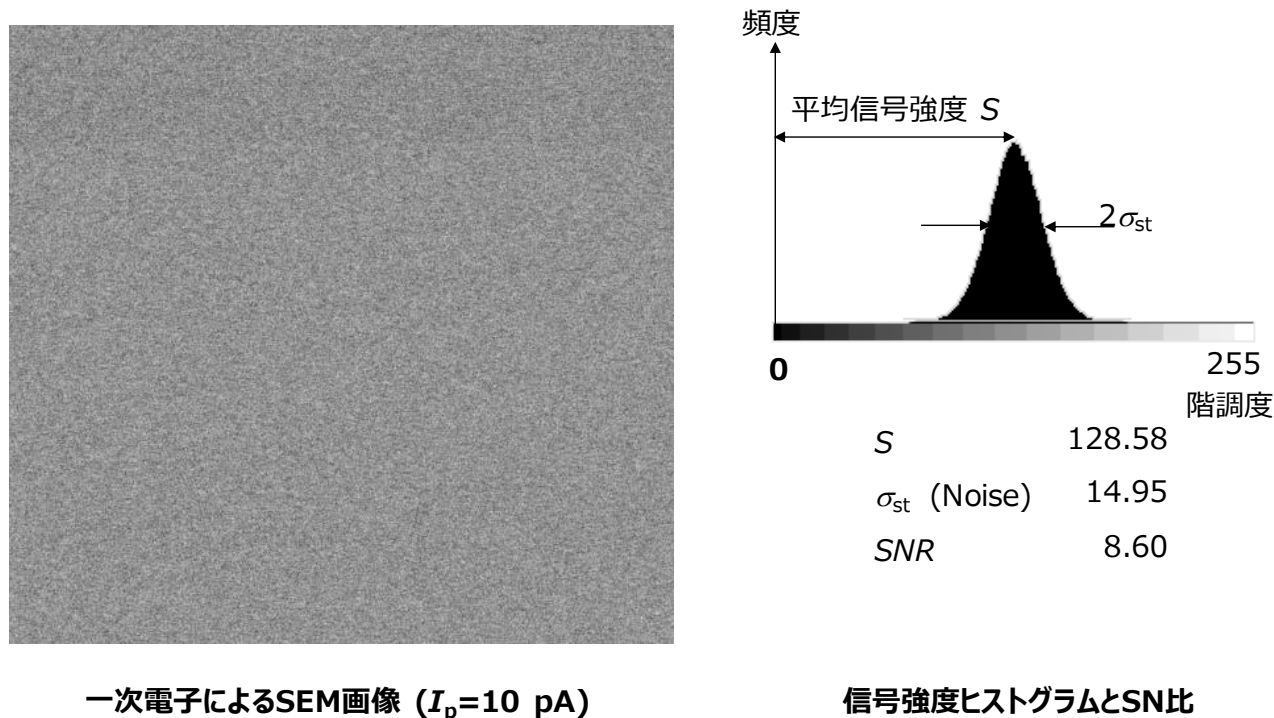
SNR を実験的に求める方法は、Joy(1996)らによって提案されている。実験で得られる SNR に高い信頼性を持たせるためには、実験の際に以下の 3 点に注意が必要である。

- (a) 一次電子を照射していないとき、検出器出力信号のオフセットを必ずゼロに調整しなければならない。あるいはビーム照射しない条件(無信号)で画像を取得しておかなければならない。
- (b) 検出器のゲインは、電圧信号の波高をデジタル信号に変換する ADC(Analogue to Digital Converter)の範囲内に、適切に調整しなければならない。これは検出器のゲインを変化させ、実測の SNR が変化しない範囲に設定すれば良い。
- (c) 試料は、凹凸のない平坦な試料を用い、試料形状による SE 収量や BSE 収量の変化を排除しなければならない。あるいは一次電子を一点に照射して走査せずに画像を取得、あるいは倍率を最大まであげて形状の影響を排除して画像を取得することもできる。ただし、コンタミネーションの影響が強くなる。得られる SEM 画像はグレー画像となる。

図 3a.3 に、10pA の一次電子を直接 ET 検出器に入射させたときに得られる SEM 画像を示す。画像処理ソフトを用いてこの画像のヒストグラムを得ることで、平均信号強度 S と、標準偏差 σ_{st} を導くことができる。この際は、あらかじめオフセットをゼロに調整したが、無信号時の平均信号強度を S_0 とすると、実験による SNR_{OUT} は次式で求めることができる。

$$SNR_{OUT} = \frac{S - S_0}{\sigma_{st}} \quad (3a.10)$$

一次電子のプローブ電流やピクセル滞在時間は設定値であるから、 SNR_{OUT} と SNR_d を比較すれば、分散パラメータ r を求めることができる。

一次電子によるSEM画像 ($I_p=10$ pA)

信号強度ヒストグラムとSN比

図 3a.3 一画像のヒストグラムを用いた SNR の測定方法

3.A.4 SNR と電子数の関係

電子計数法を用いて、電子の数を直接検出して画像化した例も報告されているが(Yamada *et al.* 1991, Uchikawa *et al.* 1992)、ほとんどの SEM では、検出した SE や BSE の数を検出器の出力電圧信号に変換して画像化している。プローブ電流が 1 pA のとき、100 nsec のピクセル時間内に到達する一次電子の個数は 0.6 個であり、P47 を採用した ET 検出器のパルス応答時間は、P47 の減衰時間だけで考えれば 80 nsec であるから(2.2.5 節参照)、実際の観察で使用するプローブ電流(数 pA~数 nA)では、多くの電子がピクセル滞在時間内で検出されている。また、3.A.1 節で述べたように、ET 検出器内でもいくつかの統計過程を経ているため、1 個の電子が ET 検出器に入射したときに出力電圧パルスの波高もばらつきがある。そこでプローブ電流が既知の一次電子を、直接 ET 検出器に入射させ、プローブ電流を変化させて SNR_{OUT} を測定した。この測定系を図 3a.4 に示す。装置はプローブ電流の変動の影響がないショットキータイプの電子源を特別に搭載した日立製の S-4500 を用いた。加速電圧はシンチレータに入射させる 10 kV に固定し、試料ホルダ上にミラー研磨した円板に -10 kV 以上の電圧を印加して一次電子を曲げて、10 keV のエネルギーで Chamber-ET 検出器のシンチレータ面に直接入射させた。ピクセル滞在時間 t_d は 100 nsec で固定した。測定した SNR_{OUT} と I_p の関係を図 3a.5 に示す。

実測した I_p と SNR_{OUT} の関係は log-log プロット上の傾き 0.5 に一致し、 $SNR \propto \sqrt{I_p}$ となることが確認できた。この結果は、入射電子個数が少ない 1 pA でも、同時に多くの電子が入射する 100 pA でも、検出器に入射した電子の数と出力電圧値パルスの相関が取れていることを意味する。一方、直接一次電子を ET 検出器に入射させたにも関わらず、 SNR_{OUT} は SNR_p とは一致せず、理論よりも良い数値を示した。図 3a.6 に、 $I_p=1$ pA のときの ET 検出器の電圧パルス波形を観察した結果を示す。3 つの電圧パルスが確認できるが、それぞ

れ一個のパルスが、入射した一個の電子に対応している(実際 10 μsec 範囲でパルスを数えて、誤差 60 個 \pm 10% の範囲で一致することを確認している)。先述したように、一個の電子の入射に対して、電圧パルス波高値がばらついていることがわかる。 τ_d を 100 nsec に設定したが、実際に出力されたパルス幅は図 3a.6 に記載してあり 200 nsec である。SEM の画像処理ボードでは、AD 変換の際、例えば 20 nsec で出力電圧をサンプリングし、100 nsec の τ_d であれば 5 点の平均値を用いる。本来、100 nsec の時間内に ET 検出器に入射した 1 個の電子の信号は、0~100 nsec 以内ですべてサンプリングされるべきだが、次のピクセルとなる 100~200 nsec の範囲でも出力電圧パルスのテールがあるため、信号がゼロであるべき 2 番目のピクセルにも信号が保存される。この現象は見かけ上 SNR が良くなる方向に働く。例えば、1 番目のピクセルの信号が 1、2 番目のピクセルの信号が 0 の場合、SNR は 0.5 となるが、2 番目のピクセルに 0.4 の信号がある場合、SNR は 0.59 となる。(3a1) 式で、ピクセル間に相関がなく独立であるという条件を満たしていない例である。P47 シンチレータの発光減衰時間は約 80 nsec なので P47 が問題ではなく、PMT 内での電子増倍過程での応答速度の遅れが問題であった。実際、PMT のブリーダー回路を改造して応答速度を上げることで、 SNR_{OUT} が SNR_p に一致することを確認した。その結果を図 3a.5 の理論直線上にある赤の四角として示す。

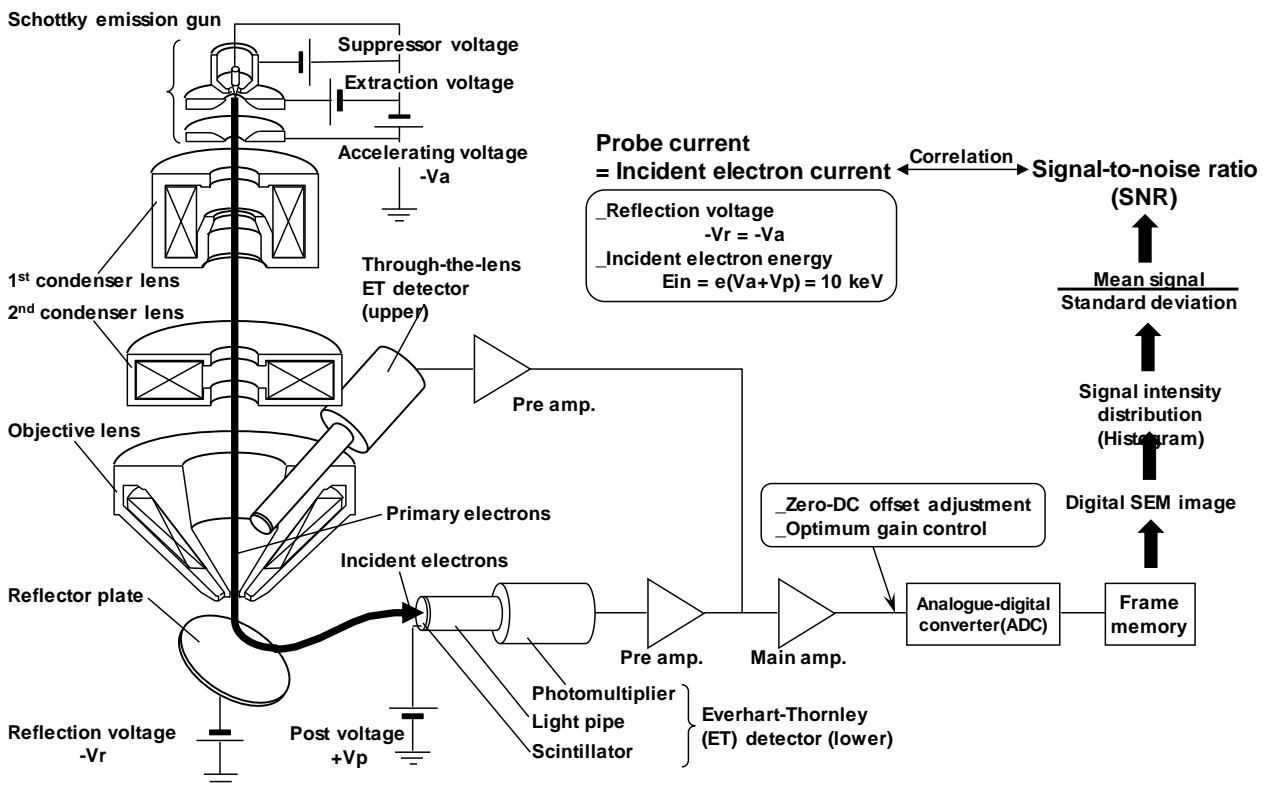


図 3a.4 I_p と SNR_{OUT} の関係を求めるための測定系 (Agemura *et. al*, 2001)

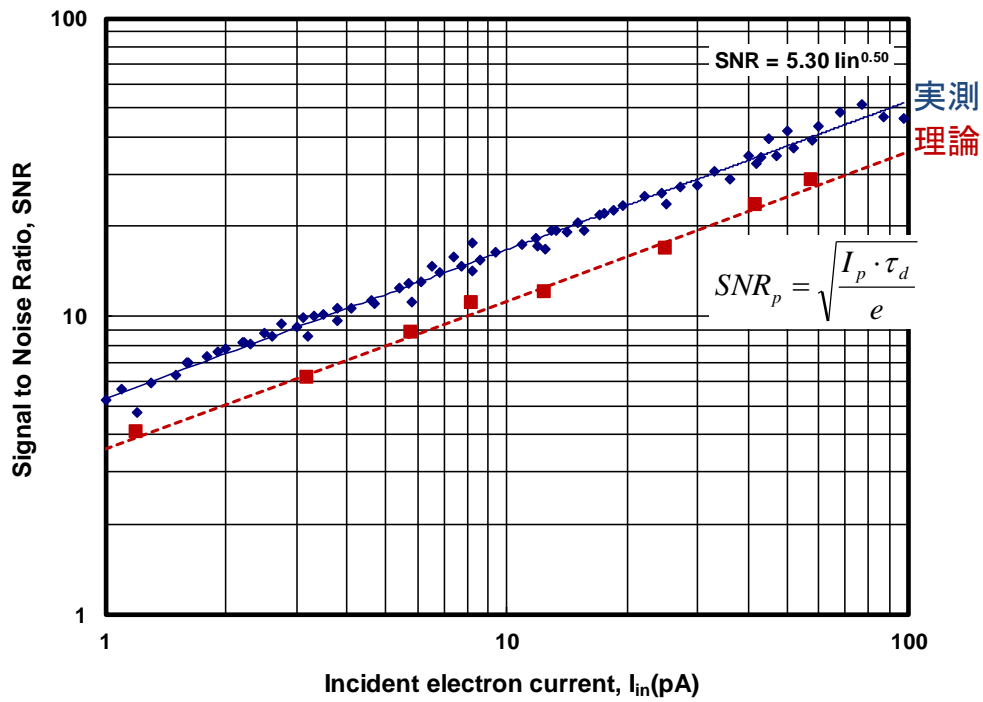


図 3a.5 I_p と SNR_{OUT} の関係 (Agemura *et. al*, 2001)

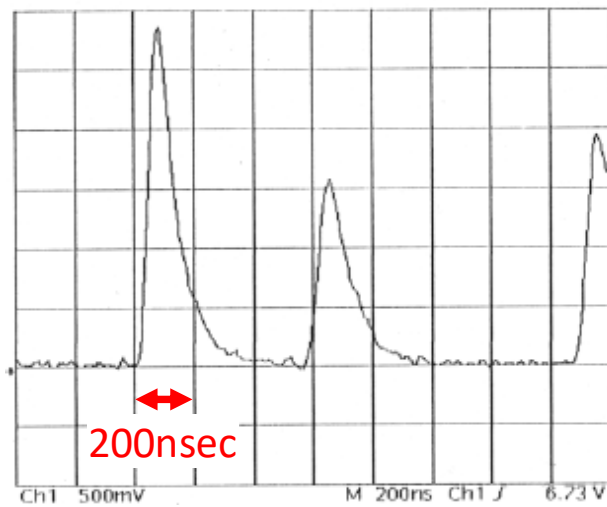


図 3a.6 $I_p=1\text{pA}$ 時の ET 検出器の出力電圧パルスの観測結果

以上のように、SNR の測定値から検出器に入射した電子の個数を計算するためには、信号処理回路の応答にも留意した測定をする必要がある。一方、コントラストを評価する際は、SE 収量や BSE 収量は文献から推定するが、文献値は超高真空チャンバー内で測定されたものが多く、実際の SEM 観察環境には合っていない。従って本章で述べたアクセプタンスから収集効率さえ判れば、画像の SNR_{OUT} から SE 収量や BSE 収量を測定することも可能になる。コントラストと SNR が関係していることから、SEM 像のコントラストを定量的に説明するためには、SNR 測定は非常に有効な手段になると考えられる。

4. 噴水型二次電子検出器の開発

4.1. はじめに

第2章に示したが、一般的にはSEは凹凸や表面情報が、BSEは組成情報が得られるとされている。一方、Auger電子分光装置を用いてSEのエネルギースペクトルを取得すると、組成によるスペクトル強度や形状の違い(図4.1(a))や、帯電の影響によるピーク強度の変化やシフトを観察することもできる(図4.1(b))。また、元素だけでなく化合物半導体や絶縁物のSEエネルギースペクトルの差異も報告されている(Joy *et al.* 2004)。さらには、SEを検出して半導体のドーパント濃度に依存したコントラストを取得する研究は、多くの報告がある(例えば代表的なもので Perovic *et al.* 1995, Sealy *et al.* 2000; El-Gomati and Wells 2001, El-Gomati *et al.* 2005, Elliott *et al.* 2002, Jayakody *et al.* 2005, Kazemian *et al.* 2007)。また最近では、リターディング法も用いて、一次電子が試料に衝突せず、試料表面の電位形状に依存して、一次電子を試料に照射せずに追いつく方法を用いて(ミラーSEM)、試料内部の欠陥の観察を実施している例もある(Isshiki *et al.* 2017)。以上のように、SEは単なる凹凸情報だけでなく、さまざまな物理情報を得ることができる可能性を秘めているが、現状、あまり有効には利用されていないのが現状である。

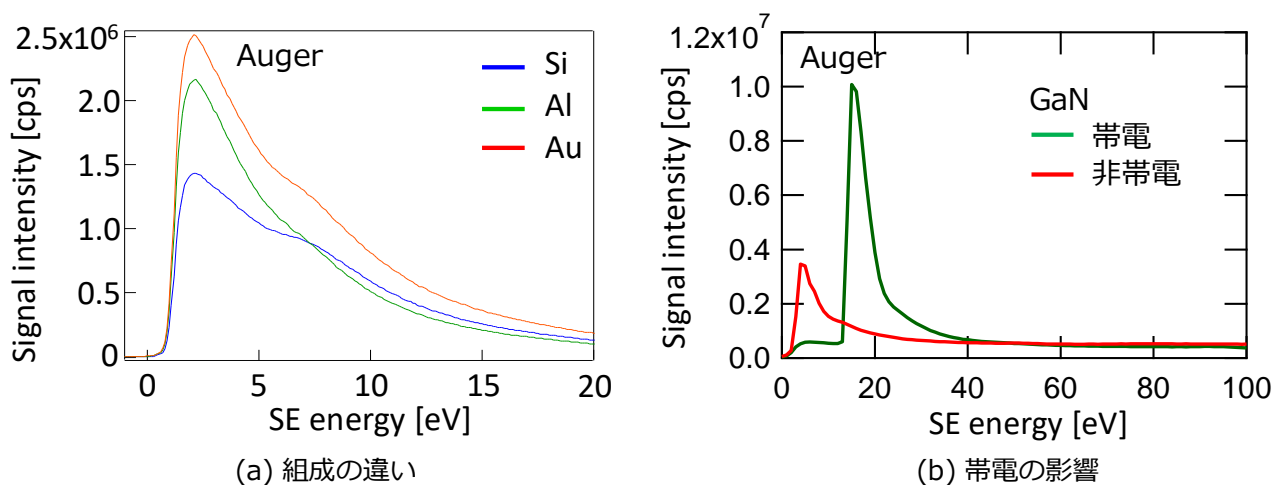


図 4.1 SE エネルギー領域での Auger スペクトル例

実際の SEM の SE、BSE 検出を考えると、BSE に関しては、エネルギーフィルターを搭載して low loss electron (LLE)を検出している例もあるが(Jaksch 2009, 2011)、使用できる加速電圧は 2 kV 以下に制限される。これは加速電圧が高くなると、加速電圧と同じエネルギーを持つ BSE を追いつく電圧も高くなり、放電によるリスクが高くなるためである。また、第1章で記載したとおり SEM に搭載されている BSE エネルギーフィルターは、TEM に搭載されている EELS(Electron Energy Loss Spectroscopy)のようなエネルギー分解能はなく、弾性散乱ピークやプラズモンロスピーク(図 2.4)を分離できない。また、Auger 電子分光装置は、SE も BSE も高い分解能で検出できるが、搭載されている CMA(Cylindrical Mirror Analyzer)や CHA(Concentric Hemispherical Analyzer)は、非常に大型で高価な装置のため、汎用的に使用されている SEM には適用されていない。

SE に関しては、BSE 検出のために SE を除去するためのフィルター(Konvalina and Müllerová 2006)は搭載されているが、いずれもエネルギー分解能は不足している。ただし、SE のエネルギーは、どの加速電圧でも同じ 50 eV 以下と固定されているため、放電のリスクなくエネルギーフィルターの実装が容易な上に、全ての加速電圧で動作できる適性がある。エネルギーフィルターとしては、ウィーンフィルター型(Kienle and Piles 2004)、トロイダル型(Khursheed and Hoang 2008, Hoang et al. 2011)の報告もあるが、原理的に最も簡単な RFA(Retarding Field Analyzer, Khursheed 2011)の適用が考えられる。また第3章で議論したように、現在の SEM の SE 検出は複数の検出器があり、カラム内部に配置されるために対物レンズ磁場や電場により、WD によってそれぞれの検出器で検出できる SE のエネルギーや角度は大きく変化する。

以上のような背景から、試料上への磁場や電場漏れのないアウトレンズ型対物レンズを搭載した①SEM の試料ホルダに搭載でき、②WD に依存せずに検出する SE のエネルギーや角度が簡単に推定できる、RFA の原理を利用した二次電子検出器、噴水型二次電子検出器(Fountain Secondary Electron Detector, FSED)を開発した。本章では、FSED の検出原理と設計、基本性能の確認と改造、表面電位感度測定、SiAlON の観察、4H-SiC の pn 接合観察と Auger 電子分光装置との比較について説明する。

4.2. 噴水検出器の設計と基本性能検証

4.2.1. FSED の基本検出原理

FSED の基本原理を図 4.2 に示す。試料上部に配置される、接地電位に維持されるガードグリッドと通常負バイアス V_f を印加するフィルターグリッド、試料の下側に配置される検出器で構成される非常に単純な RFA である。試料は検出器ユニット内に配置され、検出器ユニットをそのまま SEM の試料ホルダに配置できる構造である。そのため、WD を変化させても試料と検出器の位置関係が変わらない。フィルターグリッドの負バイアスを作るポテンシャルよりも低いエネルギーの SE は、ガードグリッド通過後、フィルターグリッドに到達せずに追いつかれて検出器に到達する。FSED の名前は、軌道が放物線を描く噴水のようになることに由来する。フィルターグリッドを作るポテンシャルよりも高いエネルギーの SE は、フィルターグリッドで追いつかれることなく通過する。そのため FSED は Low-pass filter として動作する。SE は放出されたエネルギーのまま検出器に到達する。初期の FSED では検出器は検出板に衝突する SE の吸収電流により取得している(Sekiguchi and Iwai 2015)が、本研究では、SE のエネルギーにも感度のある MCP を採用した。

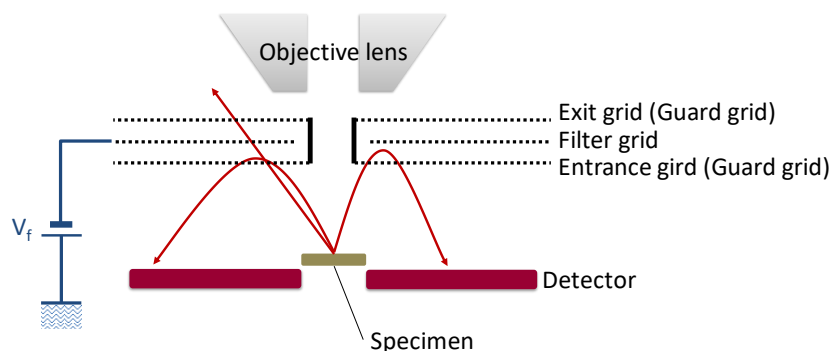


図 4.2 FSED の基本原理図

4.2.2. FSED の設計

3.2.2 節で述べた方法を用いて、SE の軌道シミュレーションとアクセプタンス図を求めた結果を図 4.3(a, b) に示す。図 4.3(a) の赤は SE の軌道を示し、ピンクは等電位線を示す。フィルターグリッドには -20 V が印加された例で、ほとんどの軌道はフィルターグリッドで追い返されるが、いくつかの軌道はフィルターグリッドを通過している。これらの軌道は 20 eV 以上のエネルギーを持った SE である。フィルターグリッドとガードグリッドが作る電位が一次電子の通過する領域に漏れないよう、エントランスグリッドとイグジットグリッドをパイプで結合している。検出器ユニットは SEM の試料ホルダに搭載されるため、試料そのものは動かさない。従って、極力このパイプの内直径を拡げて視野を大きく確保したいが、検出できる角度範囲も制限される。本研究ではパイプの内直径を $\phi 3\text{ mm}$ としている(図 4.3)。これによって 60° より高角で放出された SE はグリッドには到達せず、検出できない(図 4.3(b) の 60° より上部の非検出領域)。市販の MCP の外径は有限($\phi 28\text{ mm}$)のため、SE が検出できる角度範囲は $40^\circ \sim 60^\circ$ に制限される。 40° 以下で検出できている領域は、グリッドの外形側から漏れている等電位線の影響で、検出器側に追い返される SE による。図 4.6 で外観写真を示すが、グリッドを支える部分が外径側に更に広がっているため、これらの SE の影響は小さいと考えられる。先述のとおり、MCP の外径には制限があるため、図 4.3(a) の黄色の部分に示す低角で放出された SE を検出することができない。

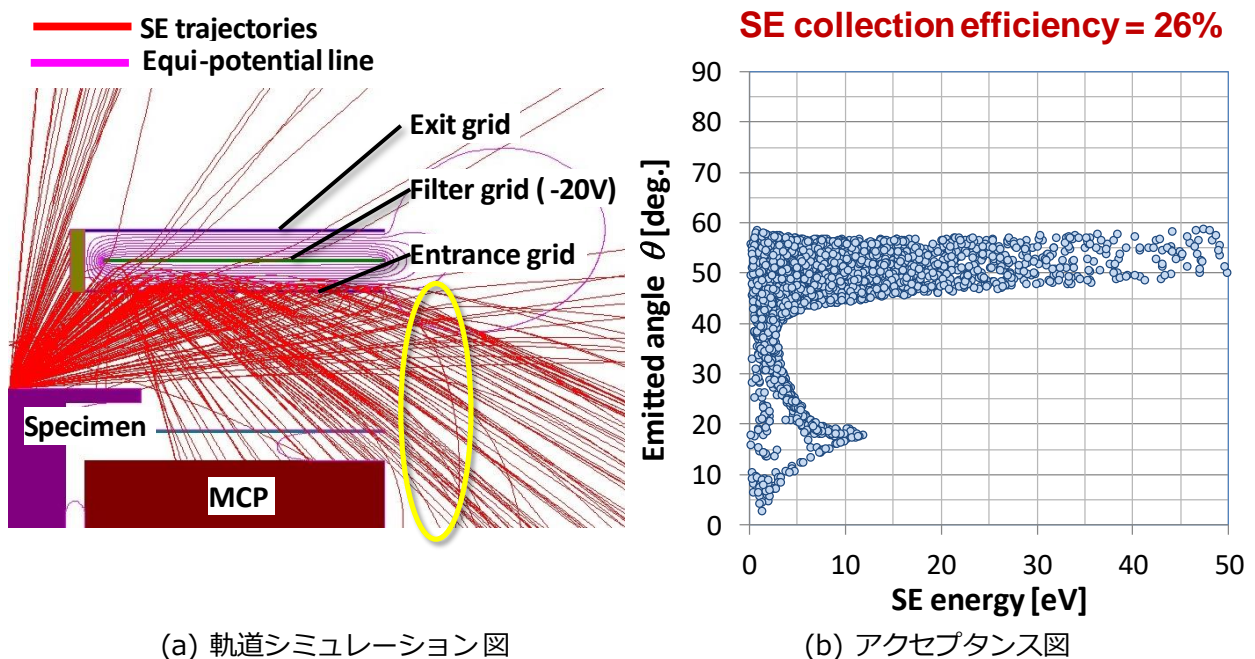


図 4.3 平板型 FSED の軌道シミュレーション図とアクセプタンス図

平板型のグリッドの場合、結果的に検出できる角度が大きく制限されるため、SE の収集効率は 26% にしかならない。コントラストは SE の検出量にも依存するため、できるだけ多く検出できる方が望ましい。そこで、試料上の一次電子照射点を焦点 f としたとき、放物線形状のグリッドが実現できれば、試料から水平方向に放出された SE も含む、どの角度で放出された SE も MCP に対して垂直に入射することができる。こ

の条件は、放物線の準線と焦点から導くことができる。図 4.4 にその関係図を示す。試料形状から考えて、試料面と水平方向に放出された SE が低角で検出できる最低角度となる(太い橙色の線)。C 点はその条件にあたり、 $(x, y) = (r, -f)$ を放物線の式 $x^2 = -4fy$ に代入すると、 $r = 2f$ が得られる。r を MCP の有効検出外半径に設定すれば良いので、14mm を選択すると $f = 7\text{mm}$ となる。従って $x^2 = -28y$ の放物面グリッドを製作すれば、試料から水平方向に出射した SE も検出できるようになる。エントランスグリッドとイグジットグリッドはフィルターグリッド前後に 1mm ずつシフトさせ、それぞれの放物面は、 $f = 6\text{mm}$ 、 8mm として計算した。

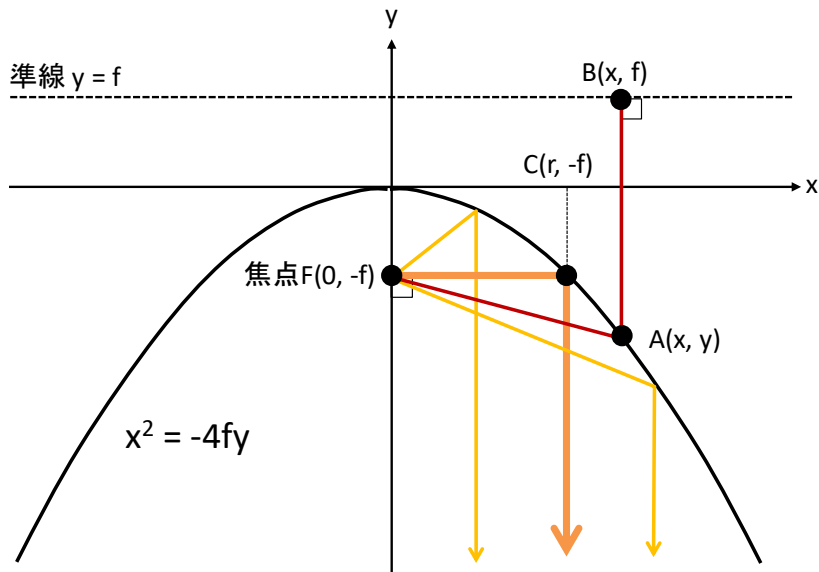


図 4.4 放物線の準線と焦点の関係

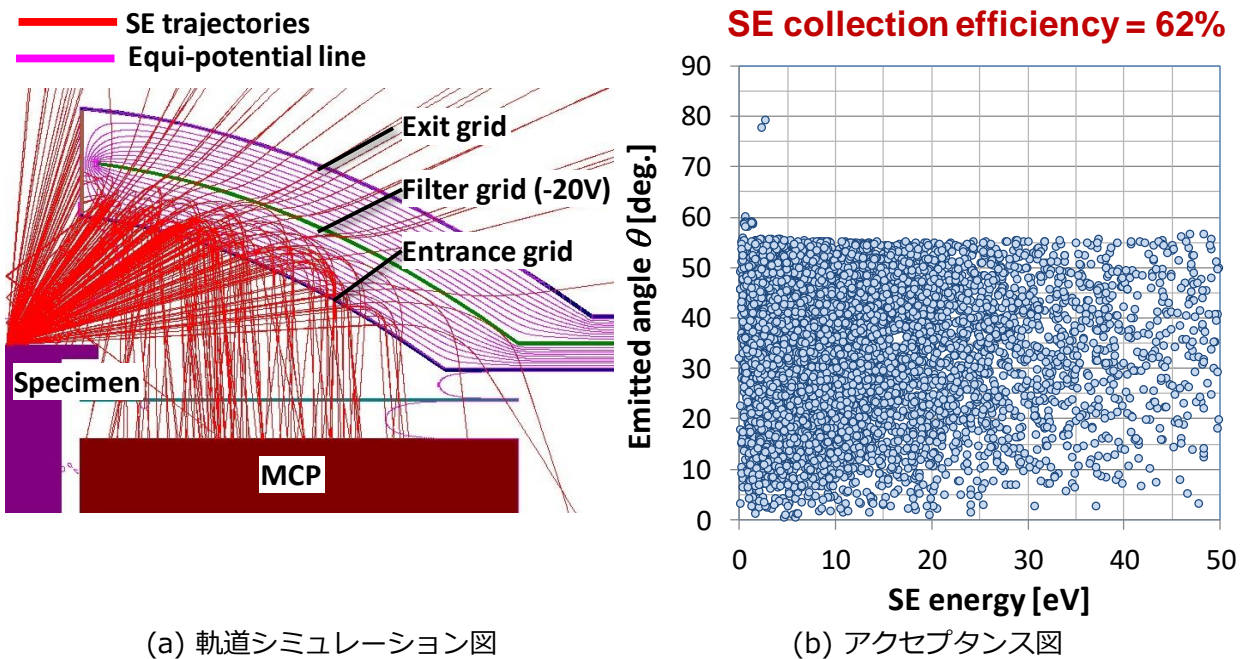
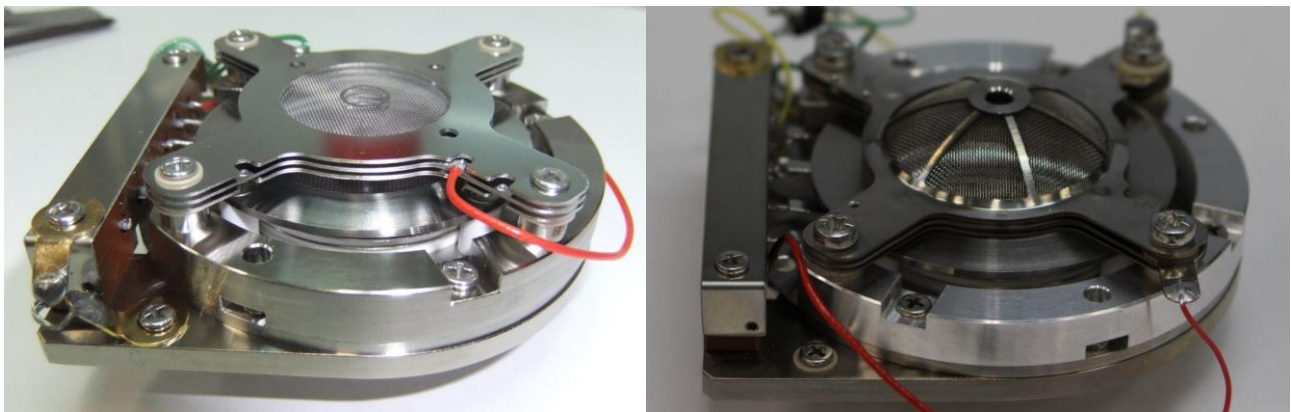


図 4.5 放物面グリッドを適用した FSED の軌道シミュレーション図とアクセプタンス図

図 4.5 に放物面グリッドを適用した FSED の軌道シミュレーション図(a)とアクセプタンス図(b)を示す。図 4.5(a)から明らかなように、試料と水平方向に放出された SE も MCP で検出できていることが判る。この設計により、SE の収集効率率は 26% から 62% にまで向上し、平板型では検出できなかった 40° 以下で放出された SE がほとんど検出できる設計となっている。理想的には放物面のグリッドが製作できれば良いが、実際には製作が困難である。従って、放物面形状に近い球面型のグリッドを製作することとした。

図 4.6 に平板グリッド型 FSED(a)と球面グリッド型 FSED(b)の外観写真をそれぞれ示す。MCP は浜松ホトニクス(株)製のセンターホールが空いた F2223-21SH である。球面型グリッドは、東北大学金属材料研究所テクニカルセンター機器開発技術グループに製作を依頼した。それら以外の部分はアプロコ(株)に発注した。



(a) 平板グリッド型FSED

(b) 球面グリッド型FSED

図 4.6 試作した平板グリッド型 FSED と球面グリッド型 FSED の外観写真

4.2.3. FSED の初期実験

FSED を用いた全ての実験は、日立ハイテック製の SEM・S-4300SE/N を用いた。この SEM はアウトレンズ型の対物レンズを有しており、試料上に磁場も電場も漏洩しない。以降、特に断りのない限り一次電子の加速電圧は 5 kV、プローブ電流は約 700 pA、WD は 15 mm でそれぞれ固定した。SEM の偏向と FSED からの出力信号は、S-4300SE/N の偏向・画像処理ボードは使わず、研究室所有の BIAMS という EBIC 画像形成用に開発された偏向・画像処理ボードとソフトウェアを用いて外部制御した。BIAMS の Pixel Dwell 時間は 1 μsec 、一枚の画像を得る際の Pixel 数は 320×320 pixels、ピクセル積算数は、後で説明するロックインアンプを使用した信号処理系では、断りのない限り 100 でそれぞれ固定した。ロックインアンプを使用しないときはピクセル積算数を 1 とした。

エネルギーフィルターの性能を評価する際、横軸にフィルター電圧、縦軸に信号量を取って得られる S カーブが一般的に用いられる (Khurshheed 2011)。本研究でも S カーブを用いたフィルター性能を検証した。これらの実験の試料は試料台とした。材質はアルミニウム (Al) である。S カーブは横軸が右に行くほど信号量が増加する傾向を示す曲線である。FSED の Low-pass filter の原理上、フィルターグリッドに印加する負バイアスが増えるほど信号量が増えると想定されるため、横軸の単位は $[-V]$ とする。また、通常、S カーブが純

粹な SE の検出を反映している場合は、S カーブの差分曲線は図 3.3(a)で示した SE のエネルギー分布に従う。図 4.7 に平板グリッドと球面グリッドの S カーブ(a)と差分曲線(b)を示す。両グリッド共にフィルター電圧がゼロでも相当量の信号が出力されている。もし SE だけ検出だけ検出されている仮定すれば、フィルター電圧がゼロのときは原理的に信号が検出されないはずである。S カーブは、フィルター電圧を増やしていくと(実際には -V のため減らしていくと)SE エネルギー分布を累積した信号を出力されていることと等価であり、グリッド電圧が -50 V のとき、全 SE が検出されると考えて良い。従って、フィルター電圧=0 V の信号量を基準にすると、両グリッド共にほぼ同じ検出量となり、シミュレーション結果(図 4.3(b)、図 4.5(b))と一致しない。また図 4.7(b)の差分曲線は、両グリッド共に 1 V 付近にピークがあり、通常 SE エネルギー分布で得られる 4~8 eV の間にあるピーク位置(Joy *et al.* 2004)とは異なる。また、図 4.7(a)の差分を取っているため、正のフィルター電圧でも差分信号が存在する。これらの測定結果は、真に SE が検出できていないことを示している。

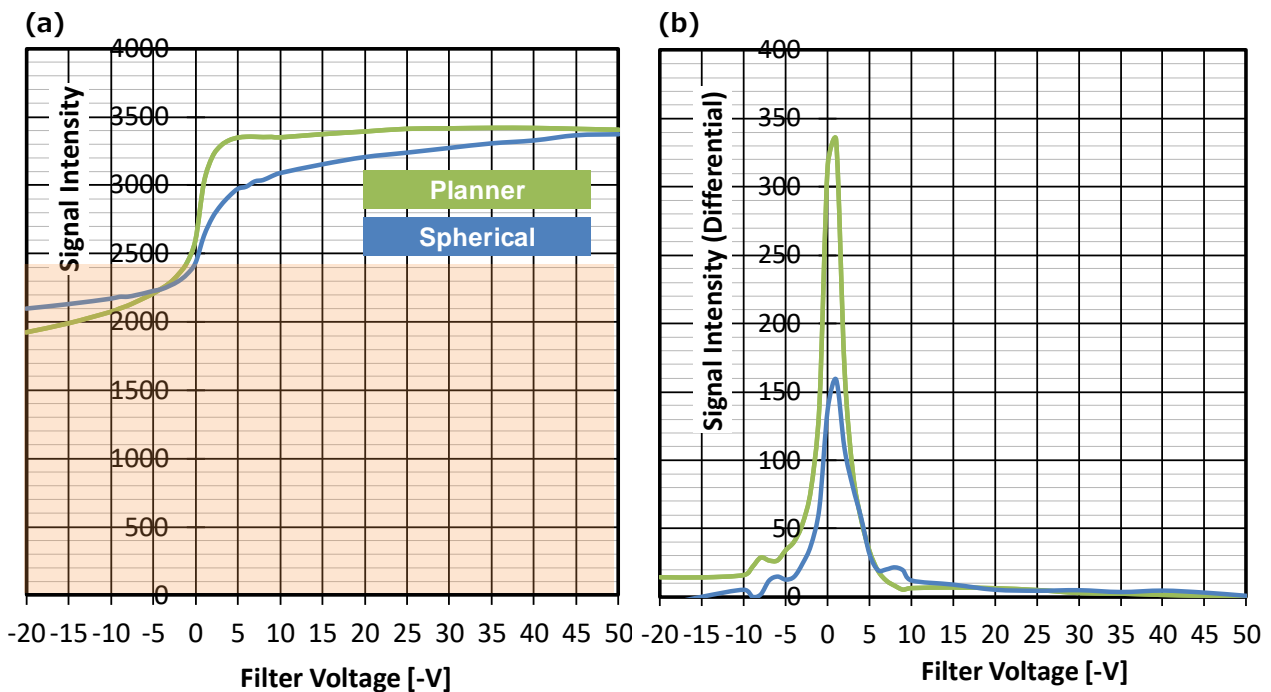


図 4.7 試作した FSED で得た S カーブ(a)と差分曲線(b)

4.2.4. SE₃ の影響度検証

真の SE が検出できない原因として、グリッドに衝突した SE/BSE により発生する SE₃ の影響が最も大きいと想定される。図 4.8(a,b)に、正と負のグリッド電圧でそれぞれ想定される現象モデルを示す。まず、試料から SE が放出されると同時に、BSE も放出されている。BSE のエネルギーはグリッド電圧が生成するポテンシャルよりも遥かに高いため、BSE の軌道は直線的に進み、バイアス電圧の正負に依存せず、同じ割合でエントランスグリッド、フィルターグリッド、イグジットグリッドに衝突する。グリッドには開口率があり、まずエントランスグリッドに衝突した以外の残りの BSE は次にフィルターグリッドに衝突し、更に残りの BSE は最後にイグジットグリッドに衝突し、残りは FSED を通過する。グリッドへの BSE の衝突確率はグリ

ットの開口率に等しく、フィルターを介する度にグリッドへの衝突確率は低下する。例えば、フィルターの開口率が50%の場合、エントランスグリッド、フィルターグリッド、イグジットグリッドにBSEが衝突する確率は、それぞれ50%、25%、12.5%となる。イグジットグリッドにBSEが衝突してSE₃が放出しても、フィルター電圧が正の場合はフィルターグリッドに誘導され、負の場合は追い返されるため、MCPに到達するSE₃の量は少なく、図4.8では無視したモデルとなっている。図4.8の現象モデルでは、フィルターグリッドが正負に関わらず、エントランスグリッドに衝突したBSEが発生するSE₃はMCPで検出される。これは図4.7(a)のSカーブの信号強度2000以下に一定に存在すると想定される。フィルター電圧が正の場合は、エントランスグリッドの壁やフィルターグリッドから発生したSE₃は、フィルターグリッドに引き寄せられる傾向にあり、その電圧が高いほど影響が強い。フィルター電圧が負の場合は、エントランスグリッドの壁やフィルターグリッドから発生したSE₃はMCPで検出される。フィルター電圧が正から負に移行する過程の変化が、図4.7(a)に見られる、フィルター電圧+5V→-5Vの変化に相当すると考えられる。

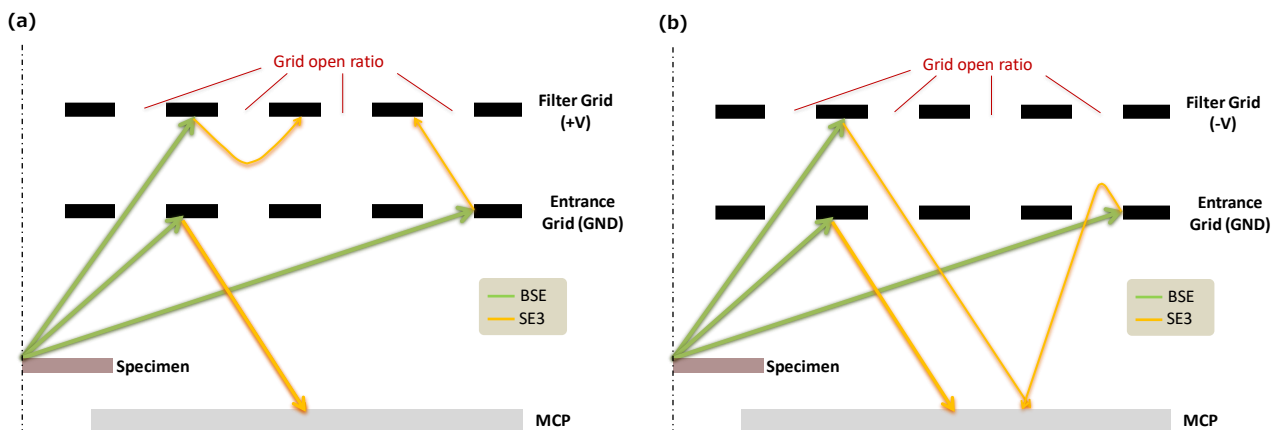


図 4.8 フィルター電圧が正の場合(a)と負の場合(b)の SE₃ の影響モデル

まず、エントランスグリッドからの SE₃ の影響を検証するため、試料、MCP の入口(MCP grid と MCP in) に -10 V のバイアス電圧(-V_s)を印加した。図 4.9 に軌道シミュレーション図(a)と実験した S カーブ(b)、差分曲線(c)をそれぞれ示す。軌道は、それぞれ 4 eV の SE₃ のみ記載してある。フィルターグリッドから出射した 4 eV の SE₃ は(点 S_f)、エントランスグリッドを出射するときは 14 eV のエネルギーを持っているため、MCP の -10 V のポテンシャルには影響されずに MCP に到達する(点 E_f)。一方、エントランスグリッドから出射した 4 eV の SE₃ は(点 S_e)、MCP の -10 V のポテンシャルの影響を受けて MCP に到達せず、最終的には両ガードグリッドを結合している中央のパイプに衝突する(点 E_f)。これにより、エントランスグリッドからの SE₃ の影響を低減することができると思われる。図 4.9(b)の S カーブを比較すると、ベースの信号強度が 2000 から 500 まで低減していることが判る。これによって、エントランスグリッドからの SE₃ が相当検出されていることが明確となった。ただし、それでもまだ正のグリッド電圧で 500 の信号強度が残っている。これは SE₃ のエネルギー分布が SE と同じであるから、10 eV 以上の SE₃ は依然として MCP に到達しているためである。一方、図 4.9(c)の差分曲線を見ると、もし、ピークが真の SE の影響であるならば、試料に V_s = -10 V を印加するとピーク位置が -10 V 側にシフトするはずである(例えば図 4.1(b))。ところがピークはシフトせず、逆に -9 V と -14 V に二つのピークを示すように変化した。これら二つのピークの起源を検証するため、次にフィルターグリッドからの SE₃ について検証する必要がある。SE も検出する必要があるため、フィ

ルターグリッドからの SE₃ を実験で抑制することはできない。そこでフィルターグリッドからの SE₃ の影響を軌道シミュレーションにより評価した。その結果を図 4.10 に示す。

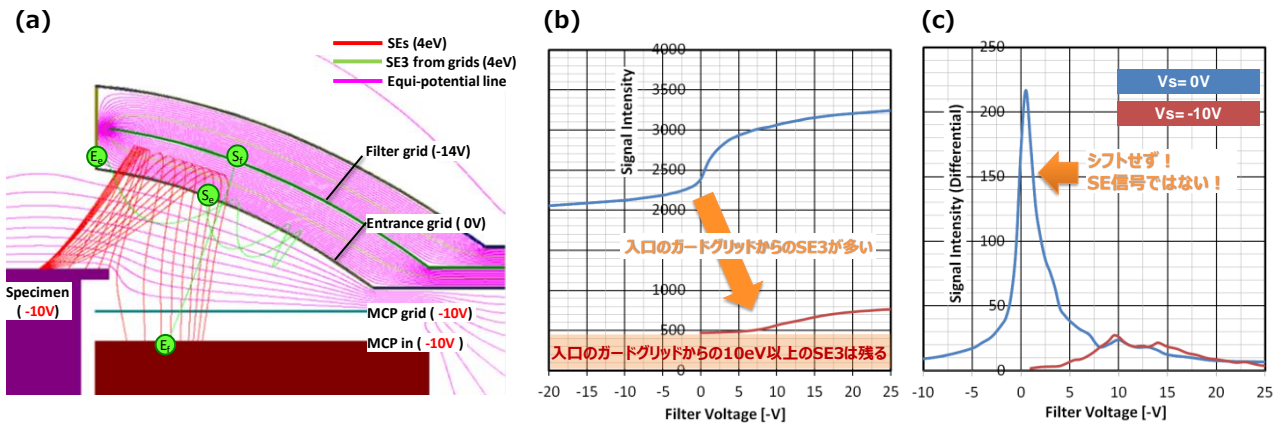


図 4.9 エントランスグリッドの SE₃ 影響検証実験:
(a) 軌道シミュレーション図; (b) S カーブ; (c) 差分曲線

図 4.9(a)の軌道シミュレーションでは、シミュレーション上ではグリッドの形状は反映されているが開口がある訳ではない。接地電位やフィルター電圧などの設定は可能であるが、材料の誘電率を設定しないため軌道はフィルターを通過する条件となっている。実際のグリッドは図 4.8 のように開口が存在し、軌道もグリッドを通過せず衝突する軌道もあるはずである。そこで図 4.10(a)のような実際のグリッド形状を平板型で模擬し、3.2.2 節で述べた方法を用いて SE(=SE₃)の軌道シミュレーションを実施した。また図 4.10 には、シミュレーションで得られた S カーブ(b)と差分曲線(c)もそれぞれ示す。

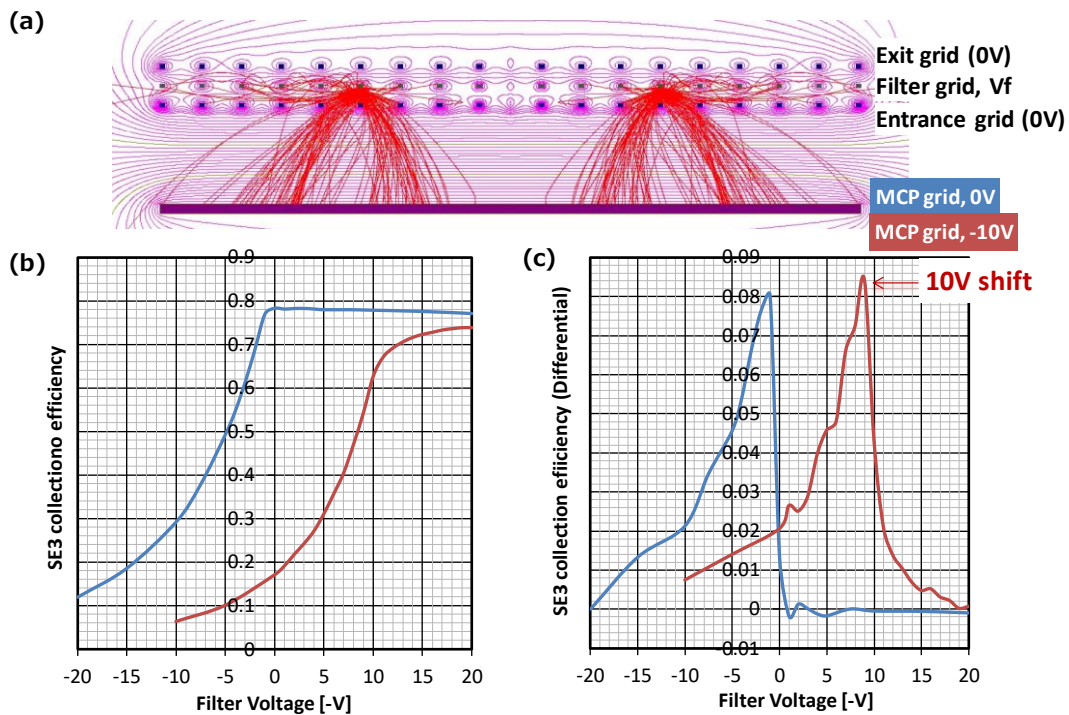


図 4.10 フィルターグリッドの SE₃ 影響検証シミュレーション:
(a) 軌道シミュレーション図; (b) S カーブ; (c) 差分曲線

図4.9(a)ではそれぞれのグリッド間の等電位線がグリッドに平行に分布しているのに対し、図4.10(a)では、グリッド間に電位の鞍点が存在し不均一である。シミュレーションによって得られた S 曲線(図 4.10(b))で、MCP 入口のバイアスがゼロ(試料バイアスがゼロと等価)の箇所を見ると、フィルター電圧を正から徐々にゼロに変化する過程で SE₃ 検出量が上昇し、+1 V~0 V で最大化する。この傾向は図 4.10(c)の差分曲線にピークとして明確に現れている。SE₃ のエネルギーは 0~50 eV であるから、例えば+20 V のフィルター電圧の場合は、20~50 eV の SE₃ は、フィルター電圧に影響されずエントランスグリッドを通過し MCP に到達する。正のフィルター電圧を小さくしていくと MCP に到達する SE₃ のエネルギー範囲は広くなり信号量も増える。MCP 入口のバイアスが-10 V(試料バイアスが-10 V と等価)の場合、差分曲線に現れているように、ピーク位置が+1 V から-9 V にシフトする。MCP 入口のバイアス電圧がゼロの場合は、フィルター電圧がゼロで 0~50 eV の SE₃ がほとんど MCP に到達するが、MCP 入口のバイアス電圧が-10 V の場合は、エントランスグリッドとの間にポテンシャル障壁が形成され、フィルター電圧がゼロでも 10~50 eV の SE₃ のみ MCP に到達する。フィルター電圧に負のバイアスを徐々に印加していくと、SE₃ はフィルターグリッドとエントランスグリッドの間で加速され、-10 V のポテンシャル障壁を超えて MCP に到達する SE₃ が増える。以上述べた原理によってピーク位置がシフトする。この-9 V のピークは、図 4.9(c)(=図 4.11(a))の差分曲線の-9 V のピークと一致する。従って図 4.11(b)の拡大図に示すように緑色のシェード部分はフィルターグリッドからの SE₃ が多くを占めると考えられる。一方、水色のシェード部分は、SE のエネルギー分布を反映していると考えられる。そこで、図 4.9(a)の MCP grid は-10 V のままとし、MCP in のみ-12 V のバイアスを印加し、-9 V のピークの除去を試みた。その結果を図 4.11(c)に示す。その結果、14V のピークは消滅せず、これは試料からの SE を反映したピークであると考えられる。一方、-12 V 以下のフィルター電圧で未だ信号が残っており、これらは図 4.9(b)で述べたようにエントランスグリッドからの 10 eV を超える SE₃ と考えられる。

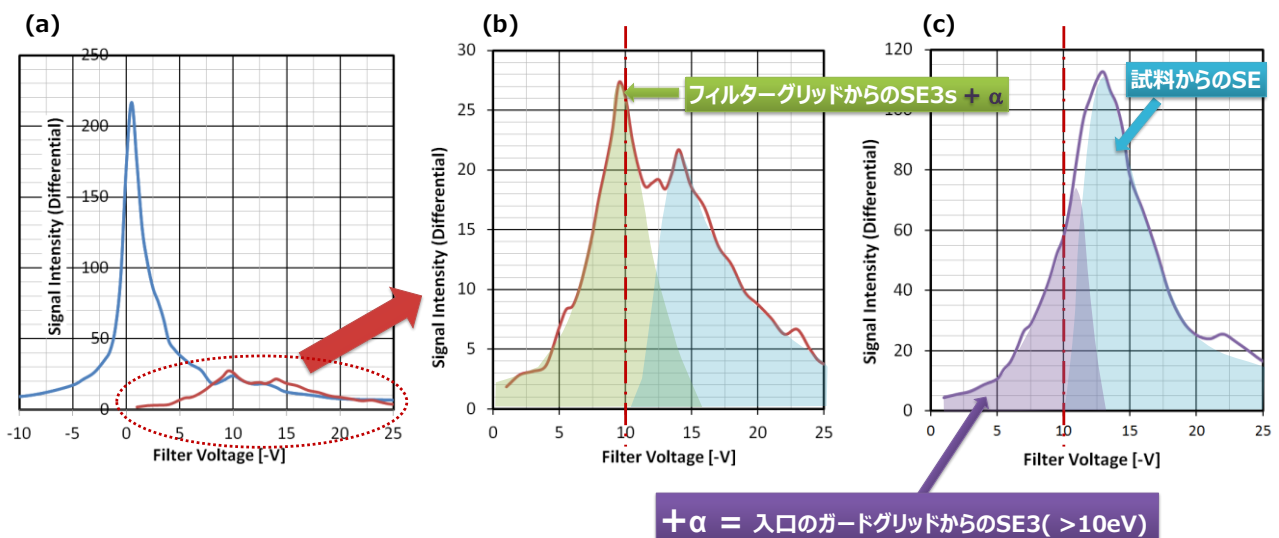


図 4.11 SE₃ 影響検証実験:

(a) 差分曲線(図 4.9(c)と同じ); (b) 拡大図とピーク起因;(c) MCP in に-12 V を印加した場合の差分曲線

更に試料のバイアス電圧を大きくして SE_3 の影響を抑制することも考えられるが、試料にバイアスを印加すると図 4.9(a)のように SE の軌道がバイアス電圧の影響を受ける。図 4.9(a)の 9本の軌道は、4 eV の SE が、 0° 、 5° 、 10° 、 15° 、 20° 、 25° 、 30° 、 35° 、 40° で放出された軌道である。 40° 以上の角度で放出された SE は試料面に押し戻されて検出できない。図 4.5(b)のアクセプタンス図から、試料バイアスが印加されていない条件では、 60° 以下の SE が検出できているから、 $40^\circ \sim 60^\circ$ で放出された、式(3.4)や図 3.6 で示した最も放出角度密度が多い SE 領域が、 $V_s = -10$ V でも検出できなくなっている。更に $-V_s$ を増やせば、検出できる SE の角度範囲は減少し、SE の収集効率も低下してくることは容易に想定できる。また、元々試料上の磁場や電場の漏れに依存しない検出器の開発を目指している。従って、根本的に SE_3 を低減できる改良を検討する必要がある。

4.2.5. グリッド開口率の変更

単純に考えると、BSE がグリッドに衝突する確率を減らせば、 SE_3 の影響は低減できる。図 4.8 で述べたとおり、BSE のグリッド衝突確率は、FSED のグリッドの開口率と等価である。図 4.6 に示した FSED のグリッドの開口率は 50%である。まずシミュレーションにより、開口を拡げることにより SE 検出量が増えるかどうかの検証を実施した。シミュレーションの前提として、以下の条件を設定する。加速電圧 5 kV の条件で、Al からの SE 収量と BSE 収量を 0.51、0.18 とする (Joy 1995)。SE の検出量は図 4.5(a)に示したシミュレーションモデルを用いて、フィルター電圧を 1 V ずつ変化させたときに MCP に到達した収集効率 $\gamma_{SE} (\propto V_f)$ と SE 収量 δ の積から求める。ただし、検出された SE は、エントランスグリッドを 2 回通過する。そのため開口率 α の二乗を掛ける必要がある。従って最終的に検出した SE は $\delta \cdot \gamma_{SE} \cdot \alpha^2$ で計算できる。試料から放出された BSE がエントランスグリッド全面に到達する確率 (=エントランスグリッド全面が検出面と考えたときの収集効率 γ_{BSE}) は軌道シミュレーションにより 85%である。試作した FSED は、最終的にはグリッドには SE_3 放出量を極力減らすために、カーボンコーティングした。ここで 5 kV の BSE がグリッドのカーボン表面に衝突した際に発生する SE_3 収量を 0.28 とする (Joy 1995)。またエントランスグリッドから放出された SE_3 は全て MCP に到達すると仮定すると、 SE_3 の検出量は $\eta \cdot \gamma_{BSE} \cdot (1 - \alpha) \cdot \delta_{SE3}$ になり、グリッドバイアスによらず一定となる。一方、図 4.10(b)の $V_s = 0$ V 時の収集効率を $\gamma_{SE3} (\propto V_f)$ とすると、フィルターグリッドからの SE_3 検出量は $\eta \cdot \gamma_{BSE} \cdot \alpha \cdot (1 - \alpha) \cdot \delta_{SE3} \cdot \gamma_{SE3}$ で計算できる。フィルター電圧 V_f に依存して変化するのは SE 検出量とフィルターグリッドからの SE_3 検出量となる。以上の条件から開口を 50%→90%に拡大したときの SE、 SE_3 の検出量を計算した結果を図 4.12 に示す。開口率 50%の場合(図 4.12(a))、SE の検出量(青)が、SE のエネルギー分布を議論する上で最も重要な 0~5V の範囲で、ほとんど SE_3 (赤、緑)に埋もれていることが明確となった。一方、開口を 90%にまで拡げると(図 4.12(b))、SE(青)の検出量が SE_3 (赤、緑)の検出量よりも多くなることが判った。

以上の結果を踏まえ、開口率 88%の球面グリッド型の FSED を試作した。その外観写真を図 4.13(b)に示す。比較のため開口率 50%の FSED も図 4.13(a)に示す。上記のとおり、グリッドからの SE_3 の放出量を低減するため、グリッド表面をカーボンスプレーでコーティングしてある。図 4.14 に試作した FSED で取得した S カーブ(a)とその差分曲線(b)を示す。比較のため開口率 50%の結果も記載した。

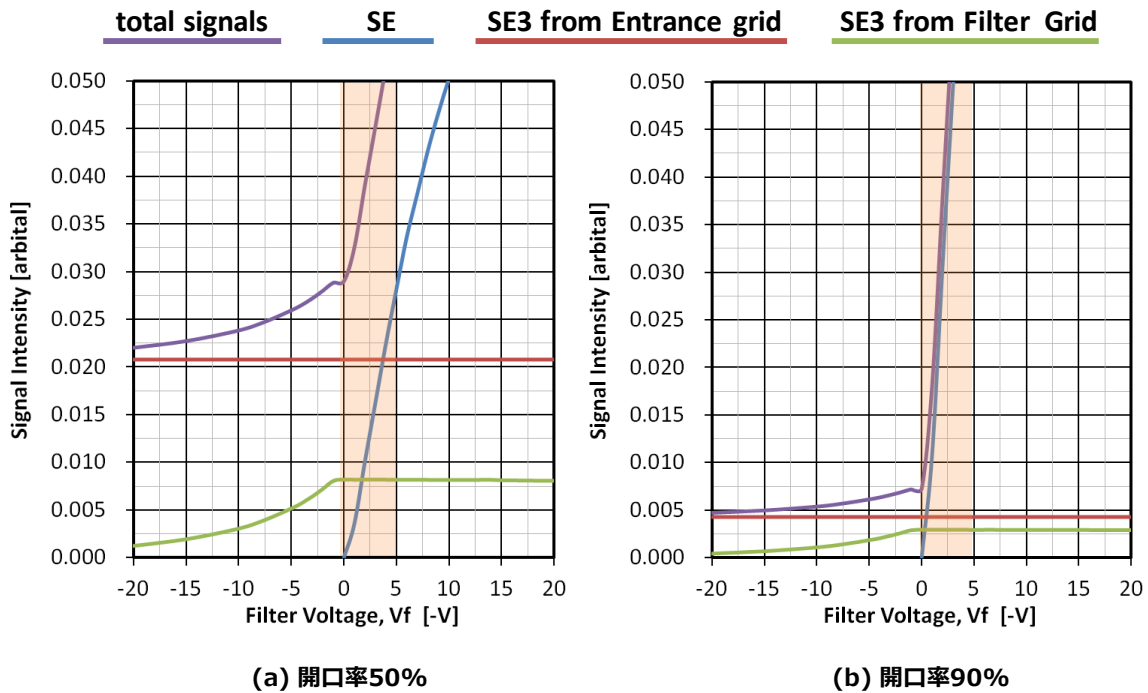


図 4.12 シミュレーションによるグリッド開口率の影響

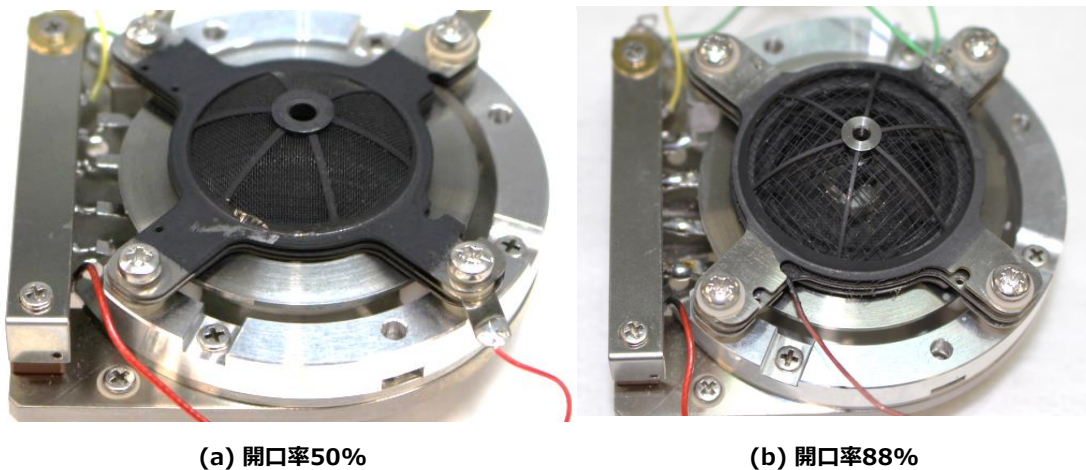


図 4.13 試作した開口を 50%(a)から 88%に拡大した FSED の外観写真

図 4.14(a)の S カーブから、フィルター電圧がゼロの点の信号強度は、開口率 50%と 90%でそれぞれ 2400 と 1500 で、フィルター電圧が 50 V の点ではそれぞれ 3400 と 3300 である。信号強度の差分は 1000 と 1800 となり、SE の検出量は 1.8 倍向上し、SE 対 SE₃ 比はそれぞれ $0.42(=1000/2400)$ と $1.2(=1800/1500)$ となるから、ノイズとなる SE₃ に対して約 3 倍の改善効果がある。一方、図 4.14(b)の差分曲線で見るとピーク位置が 1 V から 7 V 付近にシフトする。差分曲線のピーク位置は S カーブの変曲点と一致する。従って、図 4.14(a) の S カーブにおいて、未だ 1500 のベース信号が存在することによる影響で変曲点の位置がシフトすると考えられる。従って、差分曲線は SE のエネルギー分布を反映したものではないと考えるべきである。図 4.13 の外観写真から、球面のグリッドを成型して安定させるために、6 本のフレームが存在することも SE₃ が残留している要因のひとつと考えられる。

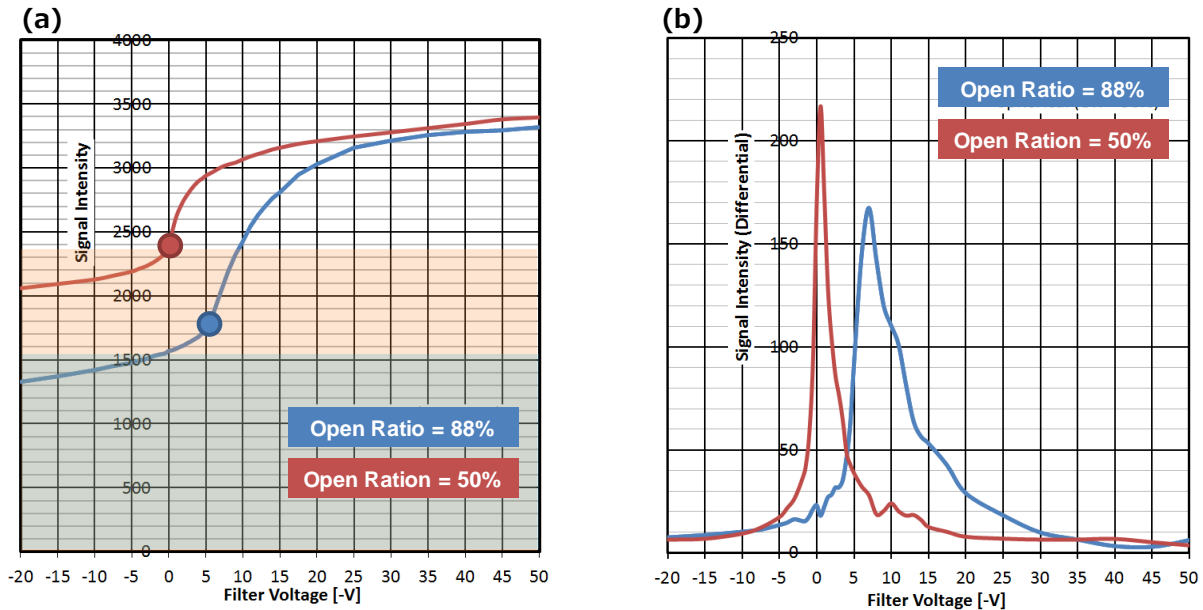


図 4.14 開口率 88% の FSED で得た S カーブ(a) と差分曲線(b)

以上の結果から、検出器ユニット単体で SE_3 の影響を完全に排除することは極めて困難であると判断し、信号検出後の後段の信号処理で純粋な SE の信号を得ることを試みることにした。

4.2.6. ロックインアンプを用いた信号検出系の構築

エネルギーフィルター電圧を変調すると、MCP の検出信号も変調される。例えば、フィルター電圧を $-4\text{ V} \pm 1\text{ V}$ で変調すると、単純にフィルター電圧と検出できる SE のエネルギーが 1:1 で対応していると仮定すれば、 -3 V のときは 3 eV 以下の SE が MCP に到達し、 -5 V のときは 5 eV 以下の SE が MCP に到達する。また 5 eV 以上の SE はグリッドを通過して MCP で検出できない。この際、信号の変化量のみ考えれば、 $-3\text{ V} \sim -5\text{ V}$ の全ての範囲で 3 eV 以下の SE は検出できているので変調成分には入らず、 $3\text{ eV} \sim 5\text{ eV}$ の範囲の SE の信号量のみが変調成分に含まれる。図 4.10 や図 4.12 の考察によると、入口のガードグリッドからの SE_3 はフィルター電圧に依存せず一定で、フィルターグリッドからの SE_3 は、フィルター電圧 ($-V_f$) が $0 \sim 0.5\text{ V}$ の範囲ではわずかに変化するだけで、 0.5 V 以上では $-V_f$ の依存性がほとんどない。従って、もし $-V_f$ の変調時に、その変調に同期した信号成分だけが検出できれば、真の SE だけが検出できる可能性がある。このような信号検出系はロックインアンプを用いることで実現できる。図 4.15(a) に構築したロックインアンプ信号検出系の構成図を示す。ファンクションジェネレータから、周波数 1 kHz 、振幅 V_{pp} のサイン波を出力し、ロックインアンプの参照信号 (Ref.) とする。またファンクションジェネレータの出力を分岐し、フローティングした DC 電源の + 側に入力する。DC 電源の出力電圧を $-V_{dc}$ に設定し、- 側からの出力をフィルターグリッドに供給する。これによってフィルターグリッドには $-V_{dc} \pm V_{pp}$ 、 1 kHz の変調電圧が供給される。一方 MCP から出力信号はロックインアンプの入力 (A) に接続する。ロックインアンプでは位相やオフセット、ゲインを調整し、参照信号と同期した出力信号 (Out) だけが、SEM の画像処理ボードに転送される。図 4.15(b) に FSED とロックインアンプ信号検出系の検出原理図を示す。図 4.15(b) の例では、フィルター電圧と検出できる SE のエネルギーが 1:1 で対応していると仮定している。 $-V_{dc}$ がオフセット電圧となり、オフセット電圧を基準

にして $\pm V_{pp}/2$ の範囲のSEのみがロックインアンプで同期して出力される。従ってFSEDは、DC電圧だけを供給していた前節までの場合ではLow-pass filterとして動作していたのに対し、ロックインアンプ検出系ではBand-pass filterとしてFSEDは動作する。

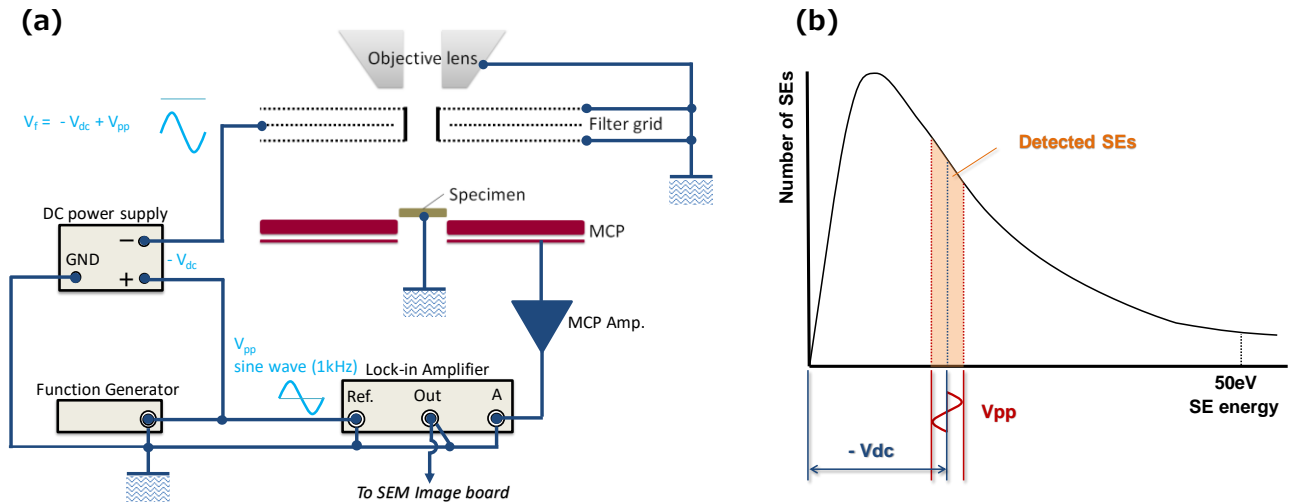


図 4.15 FSED とロックインアンプ信号検出系の構成図(a)と検出原理図(b)

本研究では、DC電源は Advantest の TR6143 を、ファンクションジェネレータは Agilent Technologies の 33250A を用いた。変調周波数はサイン波の 1 kHz に固定し、 V_{pp} は実験に応じて変化させた。

ロックインアンプは ORTEC EG&G の 5207 を用いた。5207 の自動調整機能を用いると、ファンクションジェネレータの参照信号と MCP の出力信号の位相は 120° 前後に調整される。5207 の感度やオフセットは、オシロスコープ (Agilent Technologies DSO6052A) で 5207 の出力信号をモニタしながら、5207 表示の Overload ランプができるだけ点灯しない範囲に収まるように調整した (=5207 の出力が $0 \sim +10$ V の範囲に入るように調整した)。感度の調整範囲は $20 \sim 500$ mV の範囲であった。5207 の時定数は 1 msec で固定した。

フィルター電圧を変調することで、FSED の MCP 出力となるアノードに誘導ノイズが重畳した。フィルター電圧を供給するケーブルにシールド線を追加し、検出器ユニットから試料室側面の電源供給ポートを接続するケーブルのシールド線も、フィルター電圧とその他の配線を分離してノイズ低減対策を施した。

図 4.16(a) に、試料に金メッキ (Au) を用いたときのオフセット電圧 $-V_{dc}$ と得られた画像の各ピクセルの平均グレースケールレベル (=信号強度) の関係を示す。この実験での V_{pp} は $1V (\pm 0.5 V)$ とした。金メッキの表面は平滑なため、得られる画像は凹凸のないグレー画像となり、 $-V_{dc}$ に依存してグレーレベルが変化する。この実験では、 $-V_{dc}$ を変化させた際、MCP の増幅率を調整する電圧は 1.2 kV に固定した。図 4.16(a) でも、 $-V_{dc}$ がゼロで信号があるため、真の SE 信号を反映した関係かどうかは判らない。ただし、 $-V_{dc}$ がゼロでも $\pm 0.5 V$ の変調はかかっているため、図 4.10 で述べたフィルターグリッドからの SE_3 の変化分を検出している可能性もある。そこで試料に負のバイアスを印加して、図 4.16(a) のピーク位置がシフトするかどうかを確認した。その結果を図 4.16(b) に示す。試料バイアスは 0 V、 $-0.1 V$ 、 $-0.2 V$ を印加した。図 4.16 の実験値は式 (3.1) や図 3.3(a) に示した SE エネルギー分布と、FSED のエネルギー分解能や MCP のエネルギー感度、ロックインアンプの感度やオフセット設定、 SE_3 の影響が関連しているため、近似関数を見積もることは非常に困難である。従って図 4.16(b) の点線はピーク位置を確認するためのガイドである。ただし、三つの点線とも同じ形

状を横軸縦軸にシフトさせてフィッティングした。明らかにピーク位置は 0.1 V ステップでシフトしていることが判る。従ってフィルター電圧がゼロ付近で信号が存在するものの、ピーク位置がシフトしていることからほぼ純粋に SE を検出していると言える。また FSED とロックインアンプを用いた信号検出系は、試料表面の 0.1 V の変化を捉えることができることも示された。

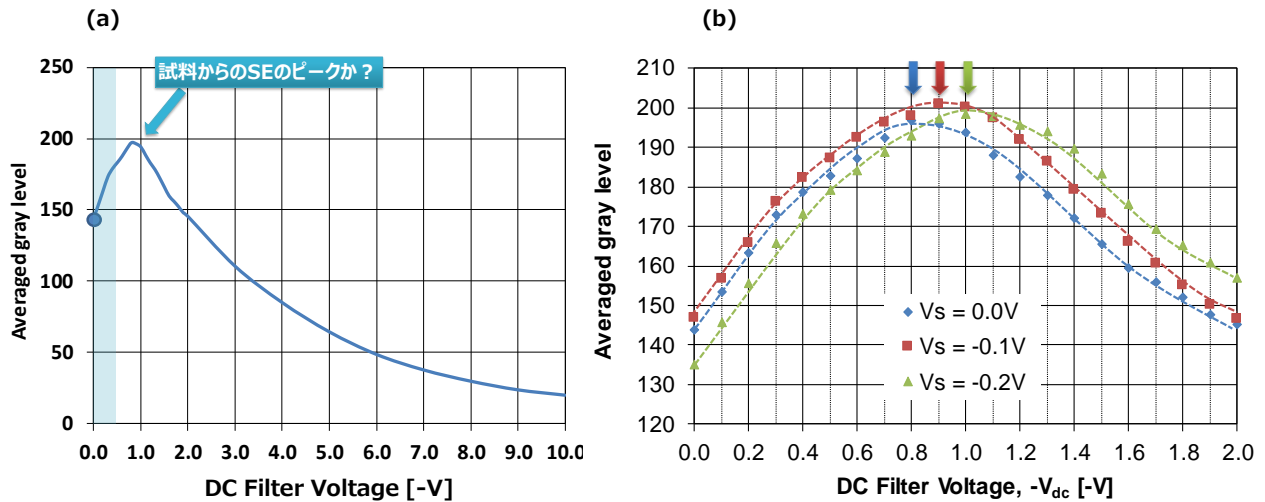


図 4.16 金メッキ観察時のフィルタ電圧と信号強度の依存性(a)と
試料バイアスを変化させたときのピーク位置シフトの関係(b)

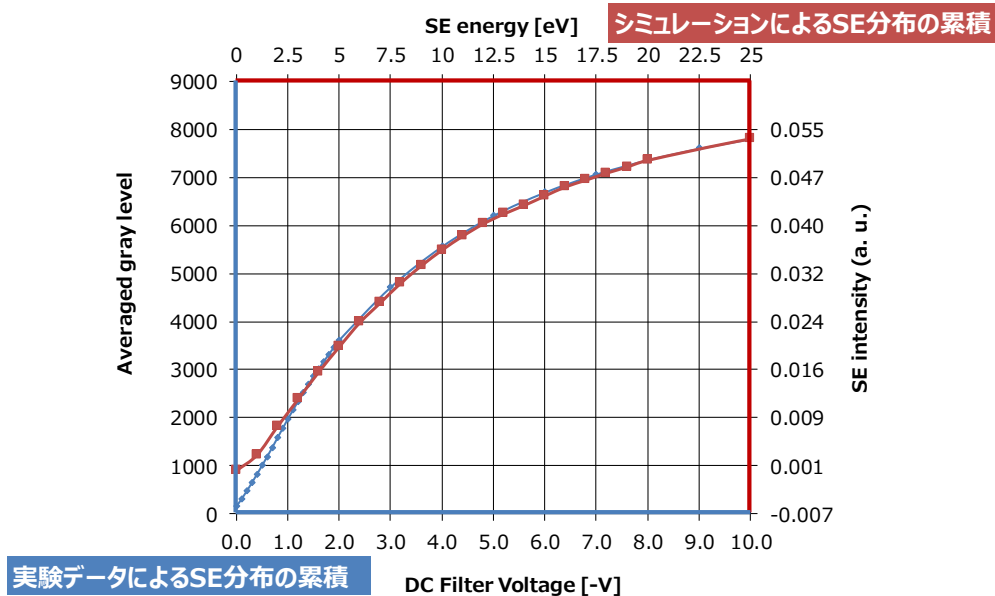


図 4.17 FSED 検出器のエネルギー較正

次にエネルギーフィルターの性能を評価する上で重要な指標は、フィルター電圧と検出している SE エネルギーの関係(エネルギー較正)である。図 4.12(b)の SE のシミュレーション曲線に、図 4.16(a)の累積分布曲線をフィッティングした結果を図 4.17 に示す。それぞれの軸関係は図中に示してある。フィルター電圧 1 V 以下でのずれは、フィルターグリッドからの SE₃ の影響である。図 4.17 からフィルター電圧-1 V に対して、

最大 2.5 eV の SE を検出していると考えられる。-1 V のフィルター電圧で 2.5 eV の SE が検出できる理由は、以下のように説明できる。図 4.5(a) の軌道シミュレーション図を見ると、ガードグリッドとフィルターグリッド間で形成している等電位線に対して、SE が垂直に入射しているわけではない。グリッド間で形成する減速電界による SE のエネルギー損失は、等電位線に垂直な方向の成分のみ影響を受ける。従って水平な等電位線に対して 2.5 eV の SE が約 24° で入射すると、等電位線に垂直な成分の SE のエネルギーは 1 eV となる。また SE の放出角によって、等電位線に対する SE の入射角度は変化している。そのため、24° より低角で放出された SE は 2.5 eV より高いエネルギーの SE が、高角で放出された SE は 2.5 eV より低いエネルギーの SE が検出される。これら全体で平均化されて -1 V:2.5 eV の関係が成立していると考えられる。

4.2.7. 本節のまとめ

以上の検討結果、FSED ユニット単体で出来るだけ SE 検出量を増やし SE₃ 検出量を減らす改良と、ロックインアンプ検出系の採用により、真の SE を 0.1 V の表面電位感度で検出できることが判った。また、シミュレーションとの比較によるエネルギー較正を行った結果として、SE エネルギー分布が 1 V:2.5 eV の関係で取得できることも判った。次節以降では、実試料(SiAlON、4H-SiC)を FSED で観察した例を示し、得られるコントラストを議論する。

4.3. FSED による試料観察の準備

試料は以下の 2 種類を用いた。ひとつは、蛍光材料で絶縁性の SiAlON 粉体と、絶縁性の SiAlON 粉体の周りを導電性の In₂O₃ でコーティングした β-SiAlON 粉体である。試料の帯電を抑制するため、カーボンテープ上に貼り付けた Cu グリッド上にそれぞれの粉体を塗り、帯電電荷を Cu グリッドに逃す手法を用いている[脚注 1]。SiAlON の観察は、ロックインアンプ検出系を採用した FSED の性能確認のために実施した。

もうひとつはパワーデバイスへの適用が期待される 4H-SiC を斜め研磨した試料である。p-SiC と n-SiC のキャリア濃度はそれぞれ約 10¹⁸ cm⁻³ と 10¹⁶ cm⁻³ である。Al 電極と p-SiC の間には、Al/Si(約 5 μm)-Ti(約 50 nm)-Ni(約 50 nm) のバリアメタル層が形成されている。この試料を、Ar ブロードビームによる断面ポリッシャー(JEOL SM-09010)を用いて斜め研磨して p-SiC 層と n-SiC 層を表面に露出させた[脚注 2]。図 4.18 に斜め研磨の概念図と、試料の SEM 像を示す。

後の議論のため、4H-SiC pn 接合のビルトイン電圧を計算しておく。ビルトイン電圧 V_{bi} は、

$$V_{bi} = \frac{kT}{q} \ln \left(\frac{N_A^- N_D^+}{n_i^2} \right) \quad (4.1)$$

で計算できる。ここで、 k はボルツマン定数 (1.38 × 10⁻²³ J/K)、 T は室温 (293 K)、 q は素電荷 (1.602 × 10⁻¹⁹ C)、 N_A^- はアクセプター濃度 (10¹⁸ cm⁻³)、 N_D^+ はドナー濃度 (10¹⁶ cm⁻³)、 n_i は真性キャリア濃度である。群馬大学の松田順一先生が第 301 回群馬大学アナログ集積回路研究会で発表した資料によると、4H-SiC の真性キャリア濃度は以下の式で計算できる。

$$n_i = 1.70 \times 10^{16} T^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{2.08 \times 10^4}{T}} \quad (4.2)$$

脚注 1 試料は NIMS の Yujin Cho 博士に準備頂いた。

脚注 2 試料は NIMS の木村 隆博士に準備頂いた。

(4.2)式を室温で計算すると $n_1=1.26 \times 10^{-11} \text{ cm}^{-3}$ になる。(4.1)式と(4.2)式を用いて V_{bi} を計算すると、3.243 V となった。

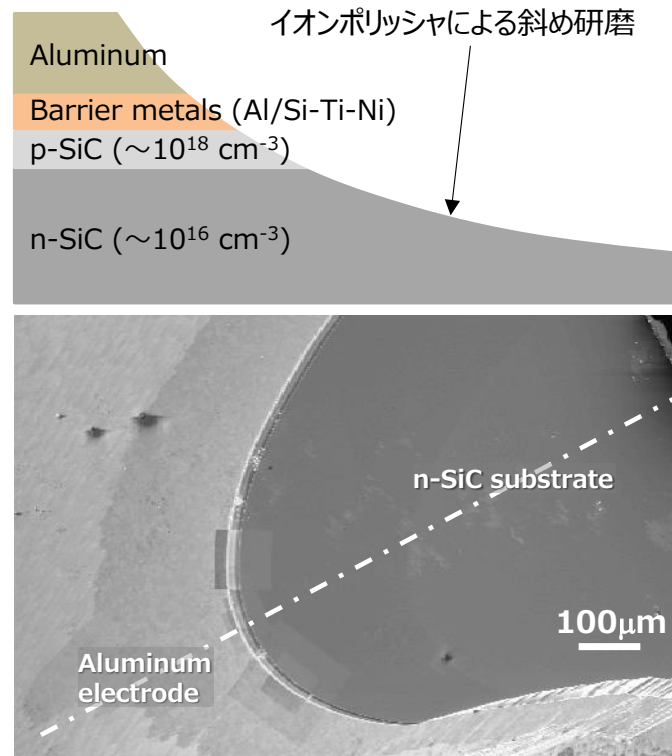


図 4.18 4H-SiC pn 接合部の断面研磨試料の概念図(上)と SEM 像(下)

4.4. FSED による SiAlON の観察

4.4.1. Chamber-ET 検出器との比較と V_{dc} 依存性

図 4.19 に Chamber-ET 検出器で観察した SEM 像(a)と、 $V_{pp}/2$ を ± 5 V に固定し、 $-V_{dc}$ を 5 V(b)、15 V(c) に変化させたときの FSED 像をそれぞれ示す。FSED 像を取得する際、MCP ゲインは 1.2 kV に、ロックインアンプの感度は 100 mV に固定とした。図 4.17 の結果から、図 4.19(b)は 0~25 eV、(c)は 25~50 eV の SE をバンドパス検出した画像と考えられる。

図 4.15(b)の SE エネルギー分布に従えば、 $-V_{dc}$ が大きくなるほど画像が暗くなるのは想定できる結果である。また、図 4.19(b)で一部明るい部分が残っているのは、チャージが除去できずに帯電している部分である。図 4.1(b)で示したように、帯電により SE エネルギー分布はシフトする。Chamber-ET 像(a)は、カーボンテープが露出している部分は FSED 像(b)も同じくコントラストが暗くなっているが、 In_2O_3 コートされた粉体の部分は、FSED 像(b)では周辺よりも暗いコントラストなのに対し、Chamber-ET 像(a)では他の粉体部分と比較して特に大きく差があるようには見えないが、FSED 像(b)では他の粉体部分との差が見られる。これは、一般的に SE 収量は絶縁性の材料の方が多いため、絶縁性の SiAlON と絶縁性と導電性の特性を持つと考えられる β -SiAlON の差が SE 収量の差のコントラストとして観察できていると考えられる。

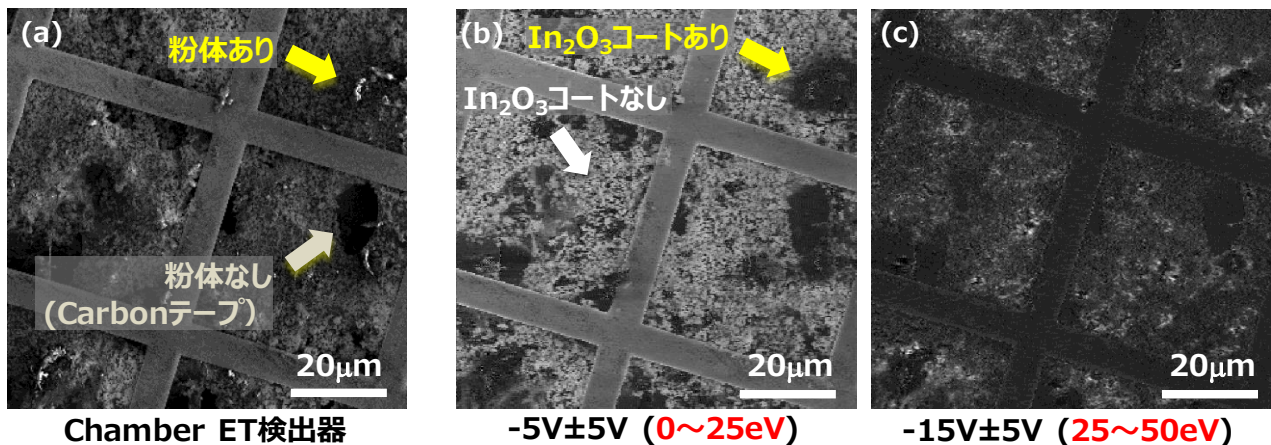


図 4.19 SiAlON の Chamber-ET 像(a)と FSED 像(b, c)

0~25 eV の範囲のコントラスト変化を更に細かく観察するため、 $V_{pp}/2$ を ± 1 V に固定し、 $-V_{dc}$ を 1~9 V の範囲で 1 V ずつシフトして FSED 像を取得した。その結果を図 4.20 に示す。Cu グリッドの表面を見ると、およそ 2~3 V で最も明るくなるため、SE エネルギー分布のピークは 5~7.5 eV にあり、Joy らの結果と比較しても尤もらしい結果である (Joy *et al.* 2004)。また、1~3 V の黄色の矢印に示したように、Cu グリッド表面のコントラストが、4 V 以上になると消滅する。また代表的に 5 V の FSED 像で比較すると、黄色の丸で囲った領域は、導電性の強い β -SiAlON が多く含まれると考えられる。一方図 4.19(b)の FSED 像は、図 4.20 の 5 V の FSED 像ほど β -SiAlON の部分が明確に区別できない。図 4.19(b)は $V_{pp}/2 = \pm 5$ V で得られた FSED 像なので、図 4.20 の画像を各 $-V_{dc}$ の画像をすべて足し合わせた画像に等しい。従って図 4.20 のように $V_{pp}/2$ を小さくすることで、試料表面の SE 放出量のわずかな変化を画像として捉えることができることが分かる。

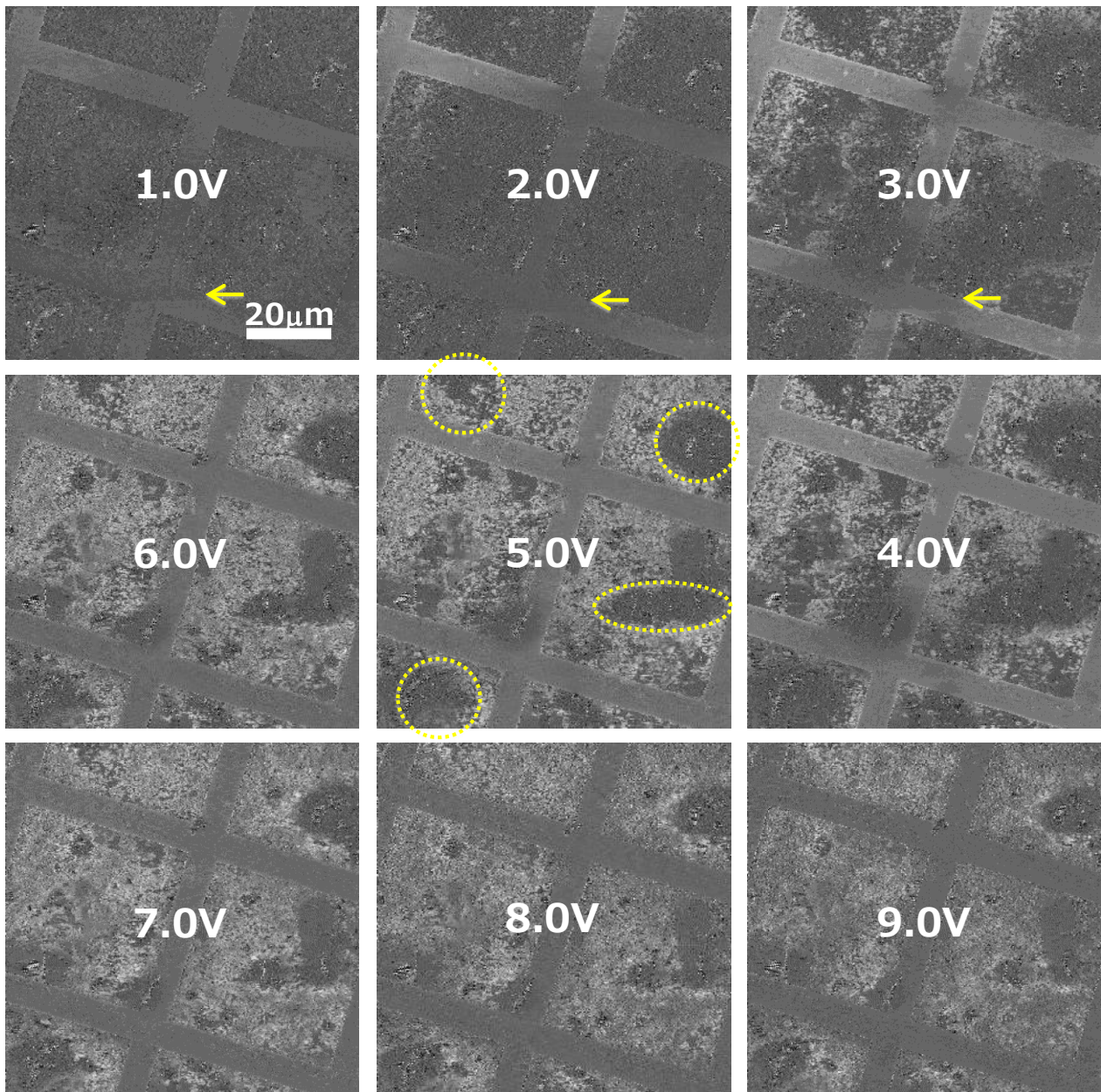


図 4.20 SiAlON の FSED 像 ($V_{pp}/2 = \pm 1 \text{ V}$ 、 $-V_{dc} = 0 \sim 9 \text{ V}/1 \text{ V}$ ステップ)

4.4.2. ロックイン画像と差分画像の比較

ロックインアンプ検出系を採用する以前は、例えば $-V_{dc} \pm V_{pp}/2 = -1 \text{ V} \pm 1 \text{ V}$ のバンドパス画像を取得したい場合には、 $-V_f$ が 2 V と 0 V の画像をそれぞれ取得し、2 枚の画像の引き算をしていた。そこで図 4.20 の $-1 \text{ V} \pm 1 \text{ V}$ 条件で得た画像と比較するため、ロックインアンプ信号処理系を切り離し、 -2 V と 0 V のフィルター電圧を印加したときの FSED 画像から差分画像を取得した。比較画像を図 4.21 に示す。

ロックインアンプ画像と差分画像を比較すると、カーボンテープの部分のコントラストが低い。ロックイン画像で Cu グリッド上の黄色の矢印部分のコントラスト変化は、差分画像では観察できない。これは差分画像が未だ BSE の影響を強く反映しているためであろう。グリッドの開口率が 50% の FSED では、 10 V 以下の条件で差分画像を取得しても、ほとんど BSE による信号で、差分画像には全く有益な情報は含まれてい

なかった。グリッドの開口を 88%に拡大し、差分による違いは確認できるようになった。一方、差分画像は最低でも 2 枚の画像を取得する必要があるため、画像を取得する時間がずれる。そのため、帯電する試料ではビームドリフトの影響を受ける可能性もあり、差分を取ることで画像がボケてしまう可能性もある。

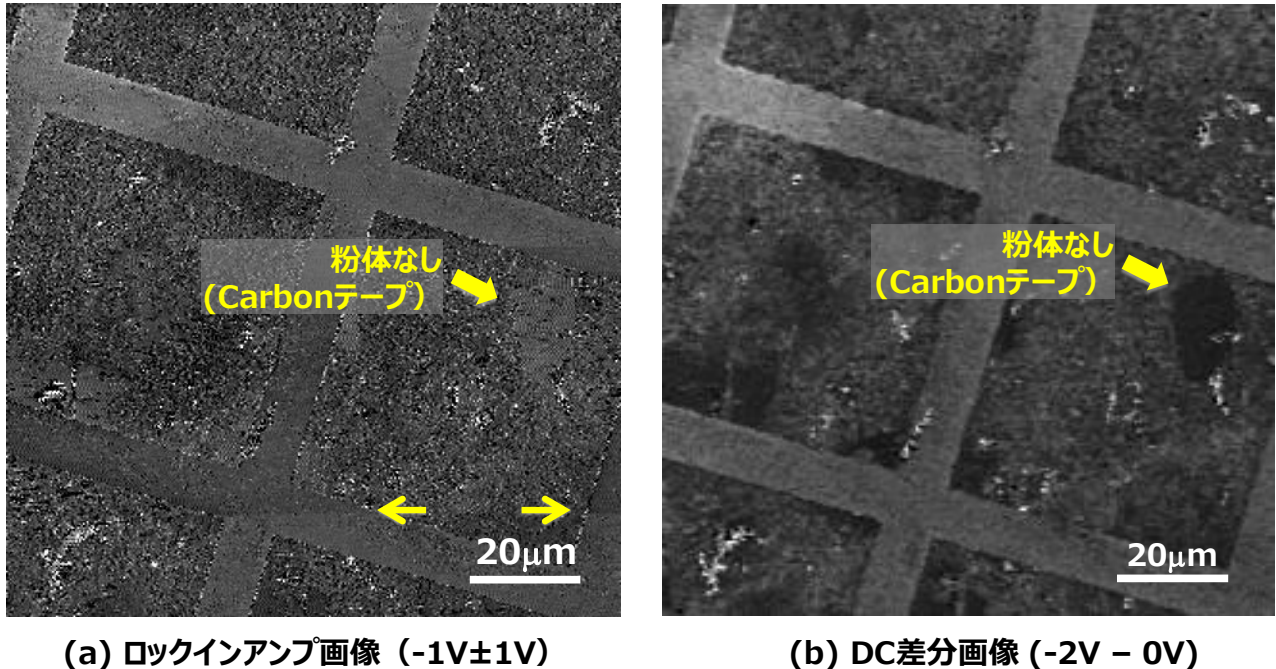


図 4.21 SiAlON のロックインアンプによる FSED 画像と DC 差分画像の比較

4.4.3. 本節のまとめ

以上のように、オフセット電圧 $-V_{dc}$ とバンドパス電圧 $V_{pp}/2$ を変化させてSEを検出し、ロックインアンプで信号処理して画像化することで、金属、絶縁体、導電処理した絶縁体、それぞれをコントラストの違いで観察できることが判った。またバンドパス検出によって、金属表面の汚れのようなコントラスト変化も捉えることができた。今回用いた SiAlON は粉体で凹凸が大きく、また局所的に帯電している箇所もあるため、図 4.16 のように、画像の平均輝度を抽出して SE エネルギー分布を得ることは困難である。そのため、今後は、表面が平坦な Si/SiO₂などの試料を、ロックインアンプ検出系を適用した FSED で観察すれば、より定量的な評価ができ、SE 放出の物理現象解明に貢献できると考える。

4.5. FSED による 4H-SiC の pn 接合の観察

4.5.1. pn 接合部の FSED 画像取得

4.3 節で述べた斜め研磨した 4H-SiC の pn 接合部を、FSED で観察した画像を図 4.22 に示す。 $V_{pp}/2$ を ± 0.25 V に固定し、 $-V_{dc}$ を 0.25~4.75 V の範囲で 0.5V ずつシフトした。FSED 像を取得する際、MCP ゲインは 1.2kV に、ロックインアンプの感度は 20 mV に固定した。また取得した画像のピクセル積算数は 200 とした。図 4.22 は一枚の画像キャプチャー時間内に取得した画像である。画像の左から右に、Al 電極層、p-SiC、n-SiC となっている。それぞれの領域に記載してある。

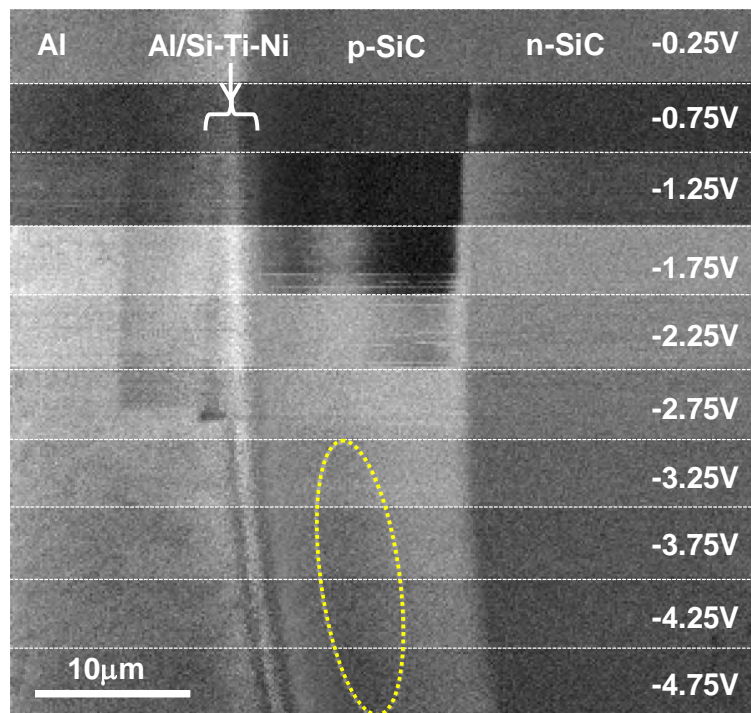


図 4.22 斜め研磨した 4H-SiC の FSED 像($V_{pp}/2 = \pm 0.25$ V、 $-V_{dc}$ を $0.25 \sim 4.75$ V/0.5 V ステップ)

p-SiC と n-SiC のコントラストは、 $-V_{dc}$ が 1.25~2.25 V の範囲で n-SiC の方が明るく、p-SiC よりも暗くなっている。これは一般的に説明されている p-領域の方が n-領域よりも明るくなる現象(例えば Perovic *et al.* 1995)と反対になる。2.25 V 以上では、p-SiC の方が n-SiC よりも明るい。この現象が正しいかどうかを確認するため、Auger 電子分光装置を用いて、エネルギー分布を取得し、FSED 像のコントラスト変化と比較した(次節)。なお、同じ p-SiC と考えられる領域で例えば 3.25 V 以上では、黄色破線の丸で囲った部分が若干暗く見える。p-SiC 層は 12.5 μm ほどの厚みを有しているように見えるが、実際には斜め研磨しているため正しくない。図 4.23 に接合層に対して垂直に断面研磨した 4H-SiC を、 $-V_f = 50$ V の DC バイアスを印加して得られた FSED 像を示す。図 4.23 から p-SiC 層の実際の厚みは 0.6 μm 程度と推定される(p-SiC 層は $3.2^\circ (= \tan^{-1}(0.7/12.5) \times 180/\pi)$ ほど傾斜して研磨されていることになる)[脚注 1]。加速電圧が 5 kV の場合、一次電子の浸入深さは 300 nm 程度であるから、ちょうど p-SiC 領域の中央部分くらいで厚みと浸入深さが同じになる。本研究では検証はしなかったが、斜め研磨した試料では、加速電圧を変化させて FSED 像がどのよ

脚注 1 使用した 4H-SiC の製作情報が不明である。p-SiC のドーパント情報を製作者に問い合わせたところ、もしかしたら 10^{18} cm^{-3} ドープした Al インプラ層 300nm、 10^{20} cm^{-3} ドープした Al インプラ層 300nm の 2 段 Box プロファイルかもしれないとのことであった。丁度真ん中付近のコントラスト変化は、この 2 段の差を捉えている可能性が高い。

うに変化するか、今後検討が必要である。一方、斜め研磨することで観察領域を拡大し、より低倍での観察が可能となるため、検出器構成上 WD が長くアウトレンズを使用する FSED では有利である。

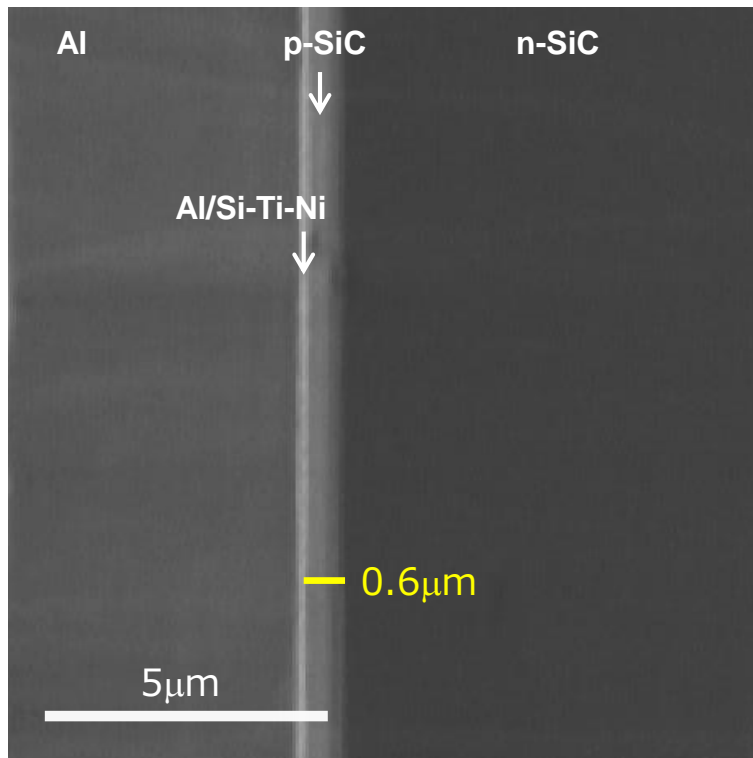


図 4.23 垂直研磨した 4H-SiC の FSED 像($-V_f=50V \pm 0.25V$)

図 4.22 に示したバリアメタル層の領域にもコントラスト変化がある。この領域を EPMA(Electron Probe Micro Analyzer)を用いて元素マッピングを実施した結果を図 4.24 に示す。図 4.24 は、NIMS の材料分析ステーションに依頼して得られた結果である。使用した EMPA 装置はの JXA-8500F (JEOL)、加速電圧は 15 kV、プローブ電流は 100 nA、観察視野幅は 20 μm 、Pixel Dwell 時間は 5 msec、Pixel サイズは 500 \times 500 pixels に設定し、X線は $K\alpha$ 線を検出してマッピング画像を取得した。先述したように斜め研磨により加工面は 3.2° 傾斜しており、対称としているバリアメタル層の観察幅は最大でも 5 μm 程度であるから最大厚みは 0.28 μm となる。一次電子の浸入深さは加速電圧 15 kV で 1.5~2 μm の範囲となるため、下層の n-SiC 層まで一次電子は透過している。Si や C の強度が Al 電極の領域でも出ているのはこの理由による。C と Si の $K\alpha$ 線のエネルギーは 0.277 eV、1.739 eV であるから($K\alpha$ は L 殻の 2p 軌道から K 殻の 1s 軌道に電子が遷移したときに放出される特性 X 線で、元素によって K 殻と L 殻のエネルギー準位が違う)、試料内を同じ距離通過する場合は、C の方が試料内で吸収され、検出できる信号強度は弱くなる。図 4.24 には、各元素で変化が顕著と思われる境界に白の点線を入れ、他の元素にもそれぞれ重ね合わせて表示した。SEM 画像(SL)は全ての点線を黄色で表示した。SEM 画像(SL)では、バリアメタル層(Ni-Ti-Al/Si)が 3 層に明るさが変化している。境界線を目安にすると、露出の順番は Ni、Ti、Al/Si となっており、形成された順と一致している。この傾向を SEM 画像(SL)と比較すると、Ti の露出が始まる層で最も明るいコントラストを示す。一方、画像全体に弱く O が検出されており、表面に酸化膜が形成されていると考えられる。ただし Ni と Ti の層で O の強度が若干低下しているが、その原因は解明できていない。また、画面全体に N も検出されているが、n-SiC 層についてはドーピングした N と思われる。ただし、Al/Si 層の境界線を目安にすると、Ti と N が同じような変化をし

ているため、TiN層が形成されている可能性もある[脚注1]。以上のように、不明な点は残るものなり、EPMAで得られたバリアメタル層を構成する元素の違いは、SEM像(SL)に重ね合わせた境界線上で、画像の明るさの変化として捕らえている。図4.22のFSED像においても3層のコントラストの違いが明確になっている。次節で説明するSEエネルギー分布を用いてバリアメタル部も比較して各元素との相関を定量的に評価できれば、FSEDを元素分析検出器として使用できる可能性がある。ただし、本研究ではこれ以上のバリアメタル層のコントラスト変化の要因追求はせず、以降はpn接合部に注目して評価を行った。

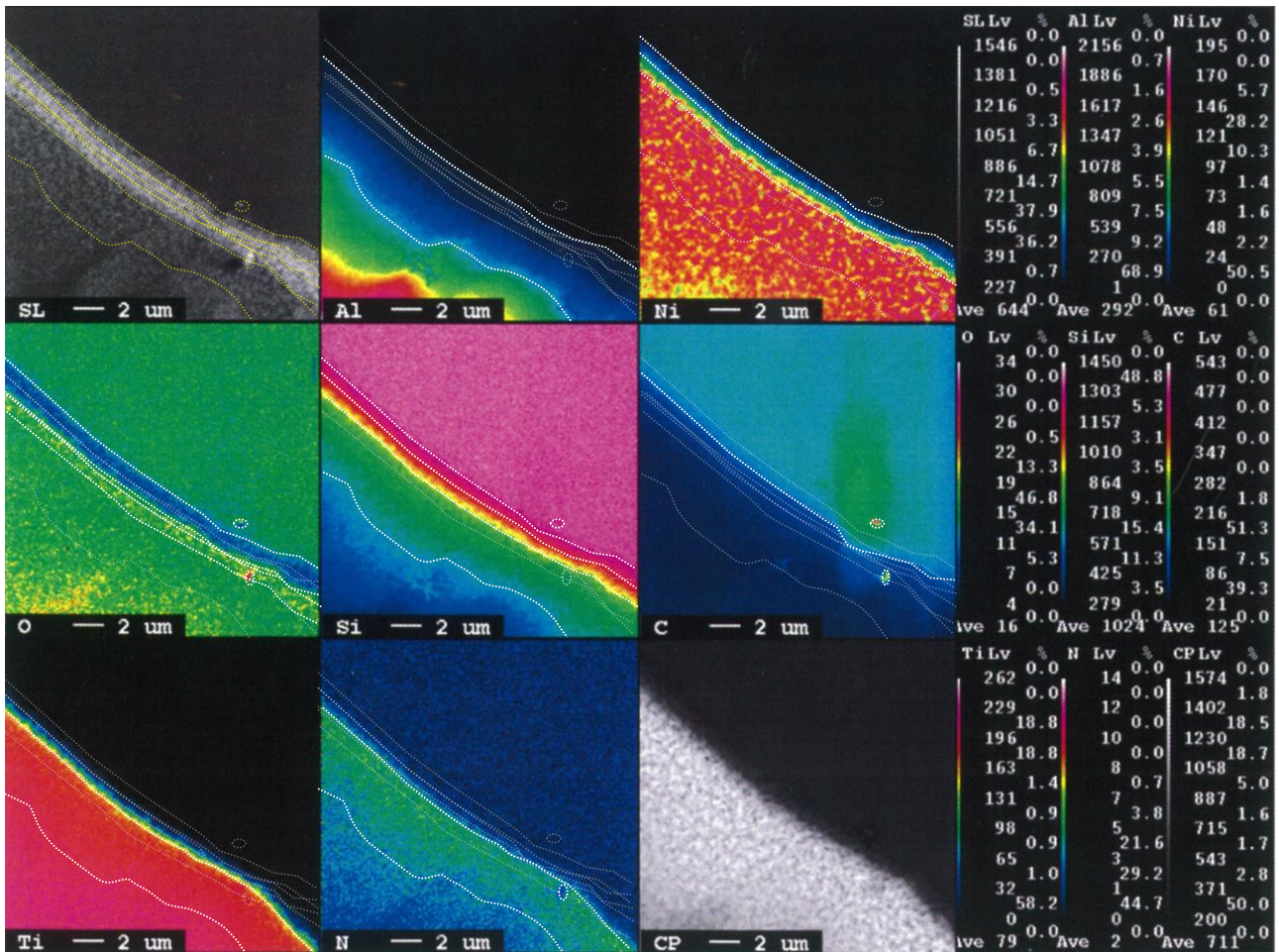


図4.24 EPMAを用いたバリアメタル層周りの元素マッピング画像比較

(NIMS材料分析ステーションに依頼)

脚注1 バリアメタル層の構成について製作者に問い合わせたところ、もしかしたらTiN(約100nm)-Ni-Ti-Al/Siかもしれないとのことであった。

4.5.2. Auger 電子分光装置で得た SE エネルギースペクトルとの比較

図 4.22 の n-SiC と p-SiC のコントラスト変化の妥当性を評価するため、Auger 電子分光装置を用いて同じ試料の SE エネルギースペクトルの取得を試みた。使用した Auger 電子分光装置は SAM68 (ULVAC-PHI) で、加速電圧は 3 kV、プローブ電流は 9.4 nA で固定した[脚注 1]。SAM680 は CMA(Cylindrical Mirror Analyzer) が搭載されている。CMA の検出エネルギーは 110 eV とし、エネルギー分解能(検出エネルギーステップ)は 0.1 eV に設定した。各エネルギーステップあたりの SE 検出時間は 20 msec に設定した。なお、図 4.25(a) にエネルギースペクトルの測定点を記した SEM 画像(SAM680 で取得)を、図 4.25(b) に各点で得られた SE エネルギースペクトルを示す。また比較のため、図 4.17 で述べたエネルギー較正のファクター 2.5 を $-V_{dc}$ に掛けた数値を横軸に、エネルギースペクトルを得た各点の周りで FSED 画像のグレーレベル平均値を縦軸にした曲線を図 4.26 に示す。

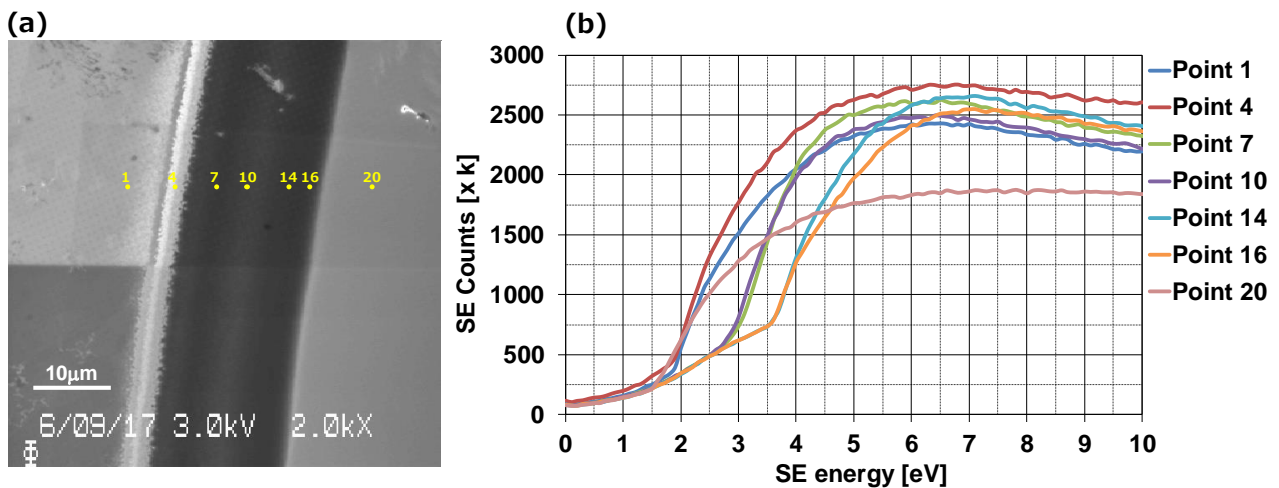


図 4.25 Auger 電子分光装置で取得した各点の SE エネルギースペクトル

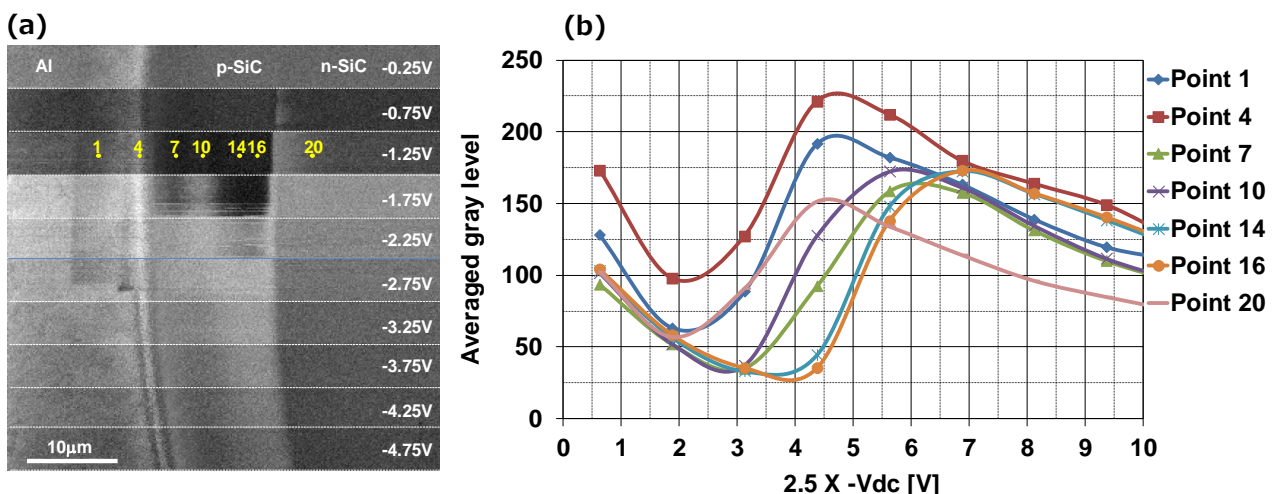


図 4.26 FSED 画像上の各点のフィルター電圧と平均輝度の関係曲線

図 4.26(b)の横軸 0~2 V の範囲は先述したように SE_3 の影響による。2 V 以上で現れるグレーレベル平均値が減少傾向から反転し上昇し始める変曲点は、図 4.25(b)の Auger 電子分光装置の SE 数が緩やかな上昇傾

脚注 1 SAM680 を用いた SE エネルギースペクトルは NIMS の木村隆博士に取得して頂いた。

向から急に上昇し始める変曲点と一致している。また、変化点と同じでも、 $-V_{dc}$ を変化させるとグレーレベル平均値が測定点で変化しているため、画像ではコントラストの違いを抽出できる。一方、 $-V_{dc}$ が大きくなりグレーレベル平均値のピークを超えると、Auger 電子分光装置と比較すると、減少傾向が強く顕著な差が見られる。これは、FSED 画像から得たグレーレベル平均値は検出した SE 数を直接反映したものではないことが影響していると考えられる。一方、SAM680 で得た図 4.25(b) のスペクトルは、SE の数を直接検出している。実際の SEM 画像から検出した SE 数を求めるためには、SNR の考え方を適用する必要がある(3.A 節参照)。SNR を画像から求める際、ブライツネス調整やゲイン調整が重要であることを 3.A.3 節で述べたが、ロックインアンプでは感度調整とオフセット調整に相当する。ロックインアンプでは、感度を変えるとオフセット調整値を変えることもあり調整が複雑である。またロックインアンプを用いると、数-電圧-周波数-電圧-数の変換となり、周波数変換を介していない 3.A 節で述べた SNR の導出方法を適用して良いかどうかは、再検証が必要になる。本研究ではこれ以上の考察は実施しないが、少なくとも SE エネルギースペクトルの変曲点は Auger 電子分光装置で得られた結果と一致する。

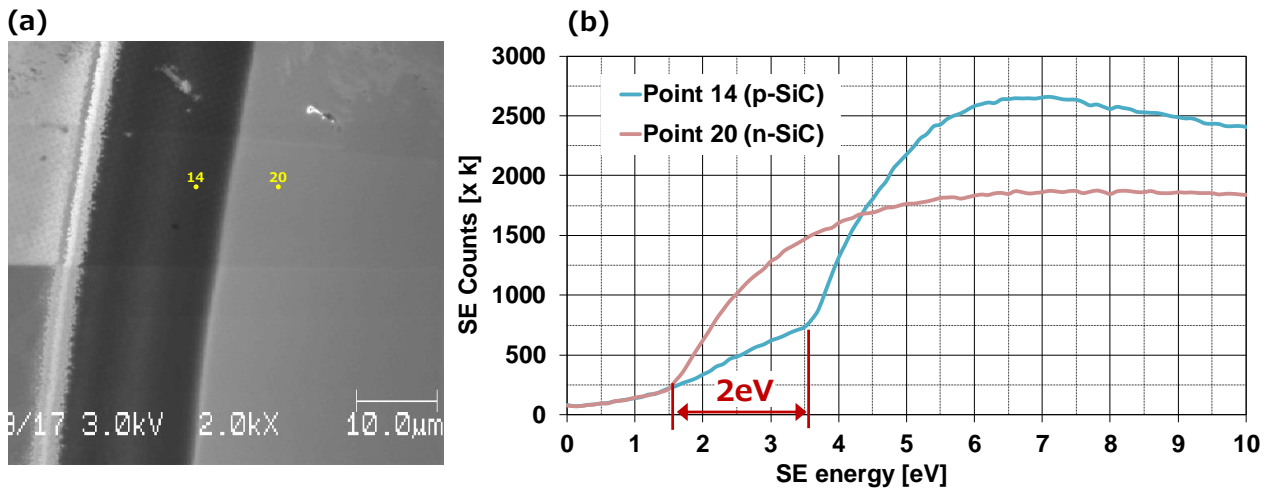


図 4.27 Auger 電子分光装置で取得した各点の SE エネルギースペクトル(pn 接合部のみ抽出)

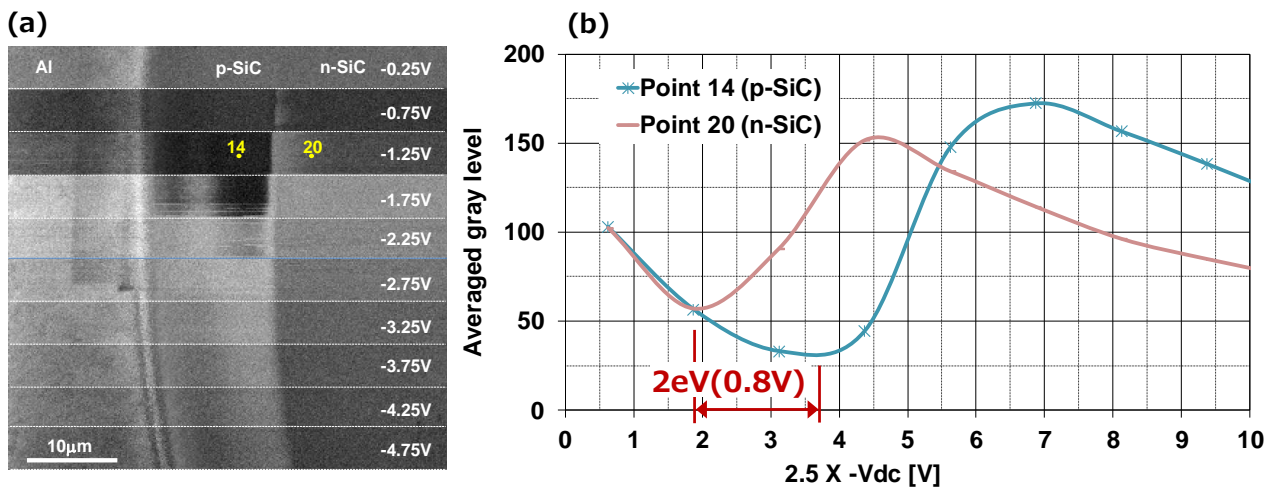


図 4.28 FSED 画像上の各点のフィルター電圧と平均輝度の関係曲線(pn 接合部のみ抽出)

4.5.3. 考察

図 4.25(a)や図 4.26(a)の SEM 像からコンタミネーションが存在することは確認できる。そのため、表面にカーボン膜が存在すると仮定した場合の n-SiC と p-SiC のエネルギーバンド図を検討した。その結果を図 4.30 に示す。カーボン膜の仕事関数 Φ_C は 5.2 eV、SiC のバンドギャップ E_g は 3.26 eV、電子親和力 χ は 3.6 eV である。Al をドープした 4H-p-SiC のイオン化エネルギー ΔE_A は 191 meV である。N をドープした 4H-n-SiC のイオン化エネルギーは、立方格子位置 ΔE_D^C で 124 meV、六方格子位置 ΔE_D^H で 66 meV となり、 $\Delta E_D^C/\Delta E_D^H$ が 1.88 となる (<http://www.sicalliance.jp/page/page000147.html>)。4H-SiC のバンドギャップ中心からのフェルミ準位は、 $N_A^- = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 、 $N_D^- = 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 、 $n_i = 1.26 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ の条件で、それぞれ 1.680 eV と 1.563 eV となり、バンドギャップが 3.26 eV であるから、価電子帯からみたフェルミ準位 ΔE_F^a は -50 meV、伝導体からみたフェルミ準位 ΔE_F^d は 67 meV となる。

n-SiC は、 $\Phi_C > \chi$ となるため、カーボン膜と n-SiC の接合はショットキー接合となる。一方 p-SiC は、 $\Phi_C < \chi + E_g$ となるため、カーボン膜と p-SiC の接合はこれもショットキー接合となる。

n-SiC では、SE 放出は価電子帯からの電子で、特にショットキー障壁で持ち上がった準位からの SE の放出が最も容易で、真空準位とのエネルギー差は 6.793 eV となる。一方 p-SiC では、価電子帯の直ぐ上のアクセプター準位にトラップされた電子による SE の放出が最も容易で、真空準位とのエネルギー差は 4.859 eV となる。n-SiC の 6.793 eV よりも低いエネルギーで SE が放出されるため、p-SiC の方が n-SiC よりも総 SE 量は多くなり、結果として SEM 像のコントラストは p-SiC が明るくなることは説明できる。

次に、SE エネルギースペクトルのシフトを、n-SiC と p-SiC でそれぞれ SE が放出されるエネルギー準位の差で考えてみる。図 4.30 から、n-SiC と p-SiC の、SE の放出が始まるエネルギー準位の差は 1.934 eV となり、図 4.27(b)や図 4.28(b)で得られた 2 eV に近い値を得ることができる。

以上のように、El-Gomatti ら(2005)のモデルで p-SiC が n-SiC よりも明るくなること、そのエネルギーシフトが 1.934 eV と実測した 2 eV に近いことを検証した。ただし、(4.2)式を用いて真性キャリア濃度 n_i を $1.3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ と計算したが、Samco の Technical Report では $n_i = 8.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ と記載してある。この場合、図 4.30 のエネルギーバンド図を再検討すると 1.612 eV となるため、2 eV との偏差が大きくなる。従って、4H-SiC の例だけで結論付けることはできず、今後、より定数が明確な Si など他の pn 接合半導体での検証が必要である。

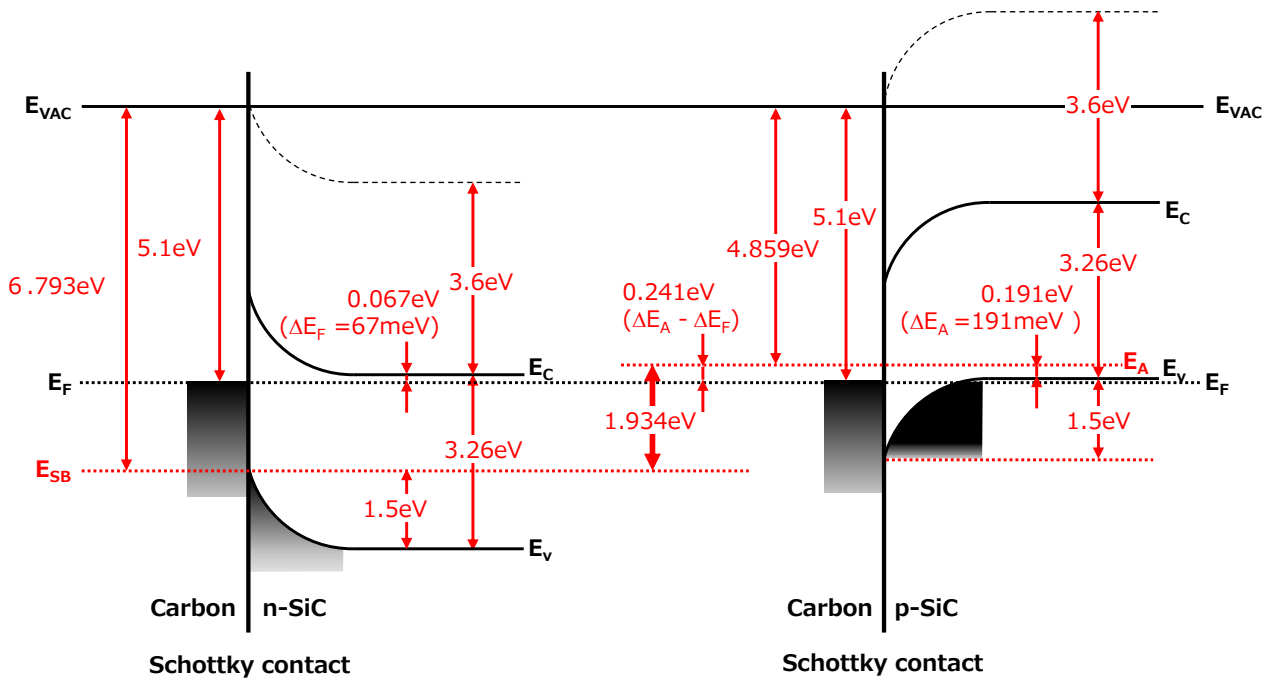


図 4.30 El-Gomati らのモデルに基づく n-SiC と p-SiC のエネルギーバンド図

4.5.4. 本節のまとめ

ロックインアンプを採用した FSED で 4H-SiC の pn 接合部を観察した。EPMA を用いた元素マッピング画像と比較し、FSED で得られる SEM 画像のコントラストが、バリアメタル層を含めた元素の違いとして観測できていることを示した。また、 $-V_{dc}$ が 1.25~2.25 V の範囲で n-SiC の方が明るく、p-SiC よりも暗くなり、一般的に説明されている p-領域の方が n-領域よりも明るくなる現象と反対になる条件があることを示した。この現象が正しいかどうかを確認するため、Auger 電子分光装置を用いてエネルギー分布を取得し、FSED 画像のコントラスト変化と比較した結果、傾向が一致することを確認し、また n-SiC と p-SiC のエネルギー分布シフトも約 2 eV で一致することを確認した。ただし、このエネルギーシフトは、Patch Field 理論で説明している pn 接合のビルトインポテンシャル qV_{bi} と 2.8 eV とは一致しない。そこで El-Gomati らが提唱している理論に基づきエネルギーバンド図を検討し、n-SiC と p-SiC の SE 放出するエネルギー準位差が 1.934 eV となることを示し、Auger 電子分光装置や FSED で得られたエネルギーシフトに近くなることを検証した。

4.6. 本章のまとめ

SEMの対物レンズ磁場や電場、WDに依存せずエネルギー弁別してSEを検出できるFSEDを開発した。グリッドの開口率を上げ、ロックインアンプを用いた信号処理系を組み合わせることで、真のSEを0.1Vの表面電位感度で検出できることを示した。また、SEのエネルギー分布と角度分布を考慮してシミュレーションしたSE検出量のSEエネルギーの関数となるSカーブと、実験で得られたSE信号強度のフィルター電圧の関数となるSカーブを比較してエネルギー較正し、2.5 eV/1 Vとなることも示した。

次に、Cuグリッド(金属)、SiAlON(絶縁体)、 β -SiAlON(導電処理した絶縁体)をFSEDで観察し、それぞれがコントラストの違いで観察できることを示した。

最後に、4H-SiCのバリアメタル層を含むpn接合部をFSEDで観察した。バリアメタル層は、FSEDで得られるSEM画像のコントラストが、EPMAで得られる元素の違いとして観測できることを示した。またpn接合は、p-領域の方がn-領域よりも明るくなる条件と暗くなる条件があることが分かった。Auger電子分光装置でSEのエネルギースペクトルを取得し、FSED像と比較すると、SEエネルギースペクトルとFSED像のコントラスト変化が同じ傾向を示すことが分かった。また、n-SiCとp-SiCのエネルギー分布のシフトも2 eVで一致することを確認した。このエネルギーシフトはEl-Gomatiらが提唱している理論に基づきエネルギーバンド図を検討すると1.934 eVとなり、Auger電子分光装置やFSEDで得られた2 eVに近い値となることを検証した。

今後の課題として、元素分析検出器としてFSEDを利用するためには、他の元素とSEエネルギー分布の相関を定量的に評価する必要がある。また、pn接合・ドーパント濃度検出器としてFSEDを利用するためには、4H-SiC以外のpn接合半導体での観察と評価が必要である。

本研究によって、超高真空中で複雑なエネルギー分光器を搭載したAuger分光器を使わなくても、FSEDはSEMの試料ホルダに簡単に搭載でき、表面電位0.1 Vを検出し、SEエネルギー分布の変化を可視化でき、かつSEMの一次電子の条件(電場、磁場、WD)に依存しない、ロバスト性のある優れた検出器であることが明らかとなった。

5. 結論

5.1. 本研究で得られた成果

SEM で得られる画像のコントラストは、観察対象となる試料の特性を評価する上で非常に重要な因子である。コントラストを形成する要素は、一次電子の照射条件、一次電子と試料の相互作用、そして検出系であるが、特に検出系に関しては、試料から放出される SE と BSE のどのエネルギー、角度の電子が検出器に到達しているか(アクセプタンス)、これまで不明確なまま SEM 画像で得られるコントラストの議論がなされてきた。当然、アクセプタンスの情報がないままの議論には限界があった。そこで先ず第 3 章では、最近の SEM に搭載されている三つの検出器、TTL 検出器、UTL 検出器、Chamber-ET 検出器に対して、加速電圧と WD を変化させてそれぞれの検出器に到達する SE と BSE のエネルギーと角度情報の取り合いを議論した。本研究で得られた成果は、SEM の加速電圧や WD の条件で最適な検出器選択の知見を与え、さらには得られる SEM 像のコントラスト形成理論の発展に貢献するものとする。以下にその成果をまとめる。

- (1) シミュレーションによってそれぞれの検出器で得られる SE や BSE のエネルギーや角度の情報(アクセプタンス)が大きく変わることを示した。これまで、例えば分解能を上げるために WD を短くしていた、あるいは X 線分析をするために EDS(Energy Dispersive Spectrometer)検出器を見込む WD に固定していたと考えられる。しかしながら、得られる SEM 像のコントラストは WD によって大きく解釈が変わり、加速電圧やプローブ電流に並ぶ重要なパラメータであるということを示した。すなわち、アクセプタンスを知ることの重要性を示した。
- (2) 短 WD では TTL 検出器が高分解能観察用の主の SE 検出器として機能し、長 WD では Chamber-ET 検出器が分解能を要求しない主 SE 検出器として機能する。更に、TTL 検出器も Chamber-ET 検出器も、検出面の前にグリッドを設けてエネルギーフィルターにより SE を追い返すことで、信号量は少ないながらも BSE 検出器として機能させることができる。また TTL 検出器が軸対称な角度検出となるため凹凸の情報は得られにくい、軸外に設置されている Chamber-ET 検出器では、同じ SE 検出器でも凹凸情報を得ることができる。
- (3) UTL 検出器は SE のエネルギーには感度がないため BSE 検出器としてのみ機能する。全 WD 範囲で B 検出可能で、また WD を上下することで検出できる角度範囲を変えることができる。UTL 検出器は半導体検出器を用いることが多く検出領域を分割できる。径方向に分割すれば更に細かい角度範囲の設定が可能となる、円周方向に分割すれば、一方向の分割部を選択することで、凹凸情報を得ることもできる。
- (4) 各検出器に到達する SE や BSE の数の絶対値を明らかにした。コントラストを定量的に説明するには非常に重要なパラメータである。

アクセプタンスや収集効率の WD 依存性は、対物レンズ磁場、電場に依存して変化する。次に第 4 章では、SEM の対物レンズ磁場や電場、WD に依存せずエネルギー弁別して SE を検出できる噴水型二次電子検出器 FSED を開発し、その基本性能を評価して、4H-SiC の pn 接合の観察に適用した。本研究で得られた成果は、FSED が単なる二次電子検出器ではなく、組成、キャリア濃度、帯電状態、欠陥などの情報が可視化、また電位状態を定量化でき、金属、半導体、絶縁体全ての機能性材料の研究に貢献できる可能性があることを見

出した。以下にその成果をまとめる。

- (1) ロックインアンプ信号処理系を構築し、0.1 V の表面電位感度で SE を検出できること、また、エネルギーフィルター電圧と検出できる SE のエネルギーを較正し、1 V/2.5 eV になることを示した。
- (2) 金属材料(Cu)、絶縁材料(SiAlON)、半絶縁性材料(β -SiAlON)を FSED で同時に観察し、それぞれがコントラストの違いで観察できることを示した。
- (3) 4H-SiC のバリアメタル層を観察し、EPMA で得た元素情報と比較して、FSED で得られる画像のコントラストが、その元素の違いを反映していることを示した。
- (4) 4H-SiC の pn 接合部を観察し、定説どおり p-SiC の方が n-SiC よりも明るくなる条件と、暗くなる条件があった。Auger 電子分光装置で得た SE のエネルギースペクトルと比較し、FSED 像のコントラスト変化と傾向が一致することを示した。
- (5) n-SiC と p-SiC のエネルギー分布に 2 eV のシフトがあることを観測した。El-Gomati らが提唱している表面にコンタミ層が形成されていることをベースとした理論に基づきエネルギーバンド図を検証した結果と 1.934 eV となり、観測した 2 eV に近い数値となることを示した。

5.2. 今後の展望

本研究に関連して、今後の課題と展望を以下に示す。

- (1) WD を選択することにより SE、BSE で得られる情報に違いがあることが SEM を利用する研究者に浸透し、その有益性が理解されるようになってくれば、現在、各製造メーカーによって不明なアクセプタンス情報は、標準的にカタログ仕様に掲載する日もそう遠くないかもしれない。
- (2) FSED の収集効率は明確であるから、通常のアンプで SEM 画像を取得して SNR を求めれば、検出器に入射した電子の個数を定量的に評価できる可能性がある。一方で、ロックインアンプを用いて画像を取得する場合、個数-電圧-周波数-電圧の変換過程が入るため、今一度、入射電子の個数と画像の関係を深く考察する必要がある。
- (3) FSED を元素検出器として用いるためには、多くの元素と FSED で得られるエネルギー分布との相関を取る必要がある。また、本研究では加速電圧は 5 kV で固定としたが、加速電圧を変えて深さ情報も考慮に入れた比較が必要である。
- (4) 非弾性散乱により放出される SE の平均自由行程は 25 eV で最小になる(<1 nm)。FSED とロックインアンプを用いたバンドパス検出により、最表面情報を得ることができる可能性がある。逆に言えば、表面の不要な情報も除去できるかもしれない。
- (5) FSED で得られる pn 接合の n 領域と p 領域のエネルギーシフト量の妥当性を検証するため、SiC だけでなく、ドーパント濃度が既知の他の半導体材料でも評価する必要がある。これらが明確になってくると、ドーパント濃度とコントラスト変化の相関を求めて、キャリア濃度検出器としても利用できる可能性がある。
- (6) 表面電位を敏感に捉えることができるので、電子ビームの注入によって局所的に帯電した内部欠陥が表面に形成する電位差を可視化できる可能性がある。

(7) MCP にマルチアノードを適用すれば、FSED による角度弁別も可能となる。また FSED は、エネルギー弁別機能がない BSE 検出器としても機能させることが可能である。

FSED は単なる凹凸情報を観察する二次電子検出器ではなく、図 5.1 に示すようなさまざまな機能を有する検出器として利用でき、また単なるイメージング用の検出器ではなく、SE によるスペクトロスコピーも実現する可能性がある。今後、上記の課題を解決できれば、SEM 像形成メカニズムの解明と、材料研究の発展に大きく貢献するものと考えられる。

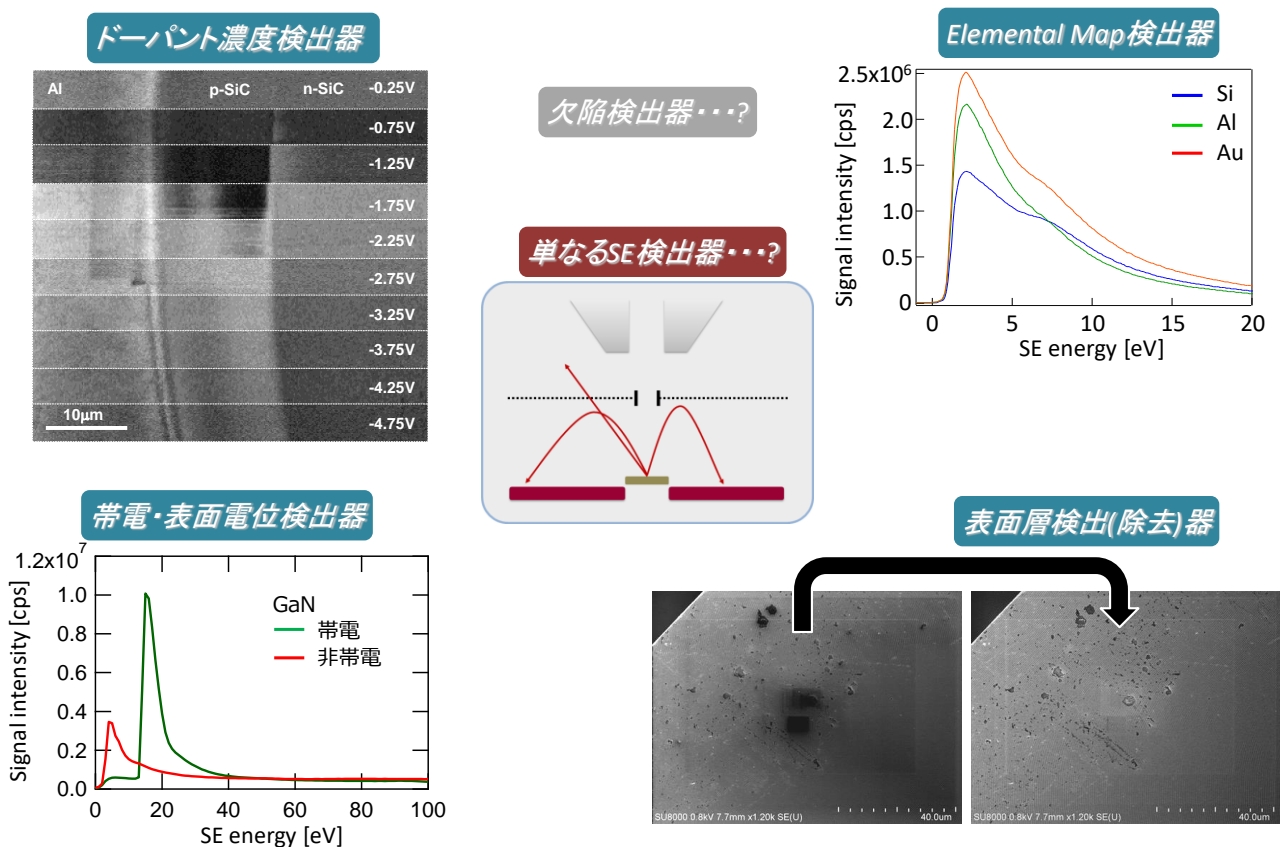


図 5.1 噴水型二次電子検出器の今後の展望

参考文献

本論文の引用文献

大石嘉雄, 浜川圭弘, 白藤純嗣 (1992) 半導体物性 II -素子と物性. (朝倉書店, 東京) 第 13 版, 1-6.

Agemura T, Fukuhara S, and Todokoro H (2001) Measurement technique for the incident electron current in secondary electron detectors and its applications in scanning electron microscopes. *SCANNING* **23**, 404-409.

Aken van R H, Lenc M, and Barth J E (2004) Aberration integrals for the low-voltage foil corrector. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **519**, 205-215.

Aoyama T, Nagoshi M, Nagano H, Sato K, and Tachibana S (2011) Selective backscattered electron imaging of material and channeling contrast in microstructures of scale on low carbon steel controlled by accelerating voltage and take-off angle. *ISIJ international* **51**, 1487-1491.

Ardenne von M (1938) The scanning electron microscope: Practical construction (in German). *Z. Tech. Phys.* **19**, 407-416.

Ardenne von M (1938) The scanning electron microscope: Theoretical fundamentals (in German). *Z. Tech. Phys.* **19**, 553-572.

Balasubramanyam M, Munro E, and Taylor J (1995) Secondary electron detection in the scanning electron microscope. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **363**, 270-275.

Baroody E M (1950) A theory of secondary electron emission from metals. *Phys. Rev.* **78** (6), 780-787.

Baumann W and Reimer L (1981) Comparison of the noise of different electron detection systems using a scintillator-photomultiplier combination. *SCANNING* **4**, 141-151.

Bruining H (1954) *Physic and applications of secondary electron emissions*. (McGraw-Hill, New York).

Cazaux J (1999) Mechanism of charging in electron spectroscopy. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **105**, 155-185.

Cazaux J, Kuwano N, and Sato K (2013) Backscattered electron imaging at low emerging angles: Aphysical approach to contrast in LVSEM. *Ultramicroscopy* **135**, 43-49.

- Chee A K W (2016) Fermi level pinning characterization on ammonium fluoride-treated surfaces of silicon by energy filtered doping contrast in the scanning electron microscope. *Sci. Rep.* **6**, 32003.
- Chee A K W and Boden S A (2016) Dopant profiling based on scanning electron and helium ion microscopy. *Ultramicroscopy* **161**, 51-58.
- Chung M S and Everhart T E (1974) Simple calculation of energy distribution of low-energy SE from metals. *J. Appl. Phys.* **45**, 707-709.
- Crew A V (1966) Scanning electron microscope – Is high resolution possible? *Science* **154**(3750), 1338-1340.
- Crew A V, Eggenberger D N, Wall J and Welter L M (1968) Electron gun using a field emission source. *Rev. Sci. Instrum.* **39**, 576-583.
- Dekker A J (1952) Secondary electron emission. In: *Solid State Physics*, 418-445, (MacMillan, London).
- Ding Z J and Shimizu (1995) A Monte Carlo modeling of electron interaction with solids including cascade secondary electron production. *SCANNING* **18**, 92-113.
- Ding Z J, Tang X D, and Shimizu R (2001) Monte Carlo study of secondary electron emission. *J. Appl. Phys.* **89**(1), 718-726.
- El-Gomati M M and Wells T C R (2001) Very-low-energy electron microscopy of doped semiconductors. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2931-2933.
- El-Gomati M M, Zaggout F, Jayacody H, Tear S, and Wilson K (2005) Why is it possible to detect doped regions of semiconductors in low voltage SEM: a review and update. *Surf. Interface Anal.* **37**, 901-911.
- Elliott S L, Broom R F, and Humphreys C J (2002) Dopant profiling with the scanning electron microscope – A study of Si. *J. Appl. Phys.* **91**, 9116-9122.
- Everhart T E and Thornley R F M (1960) Wide-band detector for micro-microampere low energy electron current. *J. Sci. Instrum.* **37**, 246-248.
- Frosien J, Plies E, and Anger K (1989) Compound magnetic and electrostatic lenses for low-voltage applications. *J. Vac. Sci. Technol. B* **7**(6), 1874-1877.

- Goldstein J I, Lyman C E, Newbury D E, Lifshin E, Echlin P, Sawyer L, Joy D C, and Michael J R (2003) *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*. (Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York Boston, Dordrecht, London, Moscow) 3rd ed.
- Hoang H Q, Osterberg M, and Khursheed A (2011) A high signal-to-noise ratio toroidal electron spectrometer for the SEM. *Ultramicroscopy* **111**, 1093-1100.
- Hren J J (1979) Specimen contamination in analytical electron microscopy: Sources and solutions. *Ultramicroscopy* **3**, 375-380.
- Ishitani T (2008) SEM image viewed from simulation behavior of penetrating electrons in specimens (in Japanese). *Kenbikyo* **43**(3), 157-161.
- Isshiki T, Hasegawa M, Sato T, Kobayashi K, Miyaki A, Iyoki M, Yamaoka Y, and Onuki K (2017) Observation of stacking faults in 4H-SiC wafer by mirror projection electron microscopy. *17th Conference on Defects – Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors*, 201-202.
- Jaksch H (2009) Imaging exotic nano structured compositions, polymers and protein with low loss BSE electrons in a field emission SEM. *MC2009*, 289-290.
- Jaksch H (2011) Contrast mechanisms low-loss backscattered electrons in a field emission SEM. *EMAS2011*, 255-269.
- Jaksch H and Martin J P (1995) High-resolution, low-voltage SEM for true surface imaging and analysis. *J. Anal. Chem.* **353**, 378-382.
- Jayakody G H, Wells T R C, and El-Gomati M M (2005) Imaging of doped Si in low and very low voltage SEM: the contrast interpretation. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **143**, 233-239.
- Jonker J L H (1951) The angular distribution of the secondary electrons of nickel. *Philips Res. Rep.* **6**, 372-387.
- Jonker J L H (1957) On the theory of secondary emission of metals. *Philips Res. Rep.* **12**, 249-258.
- Joy D C (1995) A database on electron-solid interactions. *SCANNING* **17**, 270-275.
- Joy D C and Luo S (1989) An empirical stopping power relationship for low-energy electrons. *SCANNING* **11**, 176-180.

Joy D C, Joy C S, and Bunn R D (1996) Measuring the performance of scanning electron microscope detector. *SCANNING* **18**, 533-538.

Joy D C, Prasad M S, and Meyer III H M (2004) Experimental secondary electron spectra under SEM conditions. *J. Microsc.* **215**, 77-85.

Kanaya K and Okayama S (1972) Penetration and energy-loss theory of electrons in solid targets. *J. Phys D: Appl. Phys.* **5**(1), 43-58.

Kazemian P, Mentink S A M, Rondenburg C, and Humphreys C J (2007) Quantitative secondary electron energy filtering in a scanning electron microscope and its applications. *Ultramicroscopy* **107**, 140-150.

Khursheed A (2005) A method of dynamic chromatic aberration correction in low-voltage scanning electron microscopes. *Ultramicroscopy* **103**, 255-260.

Khursheed A (2011) *Scanning Electron Microscope Optics and Spectrometers*. (World Scientific, Singapore).

Khursheed A and Hoang H Q (2008) A second-order focusing electrostatic toroidal electron spectrometer with 2π radian collection. *Ultramicroscopy* **109**, 104-110.

Kienle M and Piles E (2004) An off-axis multi-channel analyzer for secondary electrons. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **519**, 325-330.

Knell G and Plies E (1999) Simulation of an improved magnetic-electrostatic detector objective lens for LVSEM. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **427**, 99-103.

Knoll M (1935) Static potential and secondary emission of bodies under electron irradiation (in German). *Z. Tech. Phys.* **11**, 467-475.

Knoll G F (1989) *Radiation Detection and Measurement*. (John Wiley & Sons, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore) 2nd ed., 340.

Konvalina I and Müllerová I (2006) The trajectories of secondary electrons in the scanning electron microscope. *SCANNING* **28**, 245-256.

Kruit P (1991) Magnetic through-the-lens detection in electron microscopy and spectroscopy. I. *Advances in optical and electron microscopy* **12**, 93-137.

Kumagai K and Sekiguchi T (2009) Sharing secondary electrons by in-lens and out-lens detectors in

low-voltage scanning electron microscope equipped with immersion lens. *Ultramicroscopy* **109**, 368-372.

Kuwano N, Itakura M, Nagatomo Y, and Tachibana S (2010) Scanning electron microscope observation of dislocations in semiconductor and metal materials. *J. Electron Microsc.* **59**, S175-S181.

Mook H W and Kruit P (1999) On the monochromatisation of high brightness electron sources for electron microscopy. *Ultramicroscopy* **78**, 43-51.

Mook H W and Kruit P (2000) Construction and characterization of the fringe field monochromator for a field emission gun. *Ultramicroscopy* **81**, 129-139.

Munack H, Kogler W, Baumgarten H, Rubekohl C, Adamec P, Degenhardt R, Feuerbaum H –P, and Winkler D. (1999) Design and implementation of a detector for on-axis electrons for enabling enhanced imaging of topographical structures. *J. Vac. Sci. Technol. B* **17**(6), 2827-2829.

Munro E, Orloff J, Rutherford R and Wallmark J (1988) High-resolution, low-energy beams by means of mirror optics. *J. Vac. Sci. Technol. B* **6**(6), 1971-1976.

Müllerová I (2001) Imaging of specimens at optimized low and very low energies in Scanning Electron Microscopes. *SCANNING* **23**, 379-394.

Müllerová I and Lenc L (1992) Some approaches to low-voltage scanning electron microscopy. *Ultramicroscopy* **41**, 399-410.

Nagoshi M, Aoyama T, and Sato K (2013) Extraction of topographic and material contrasts on surfaces from SEM images obtained by energy filtering detection with low-energy primary electrons. *Ultramicroscopy* **124**, 20-25.

Nagoshi M, Kawano T, and Sato K (2016) Simple separations of topographic and material contrasts using one annular type in-lens detector of low-voltage SEM. *Surf. Interface Anal.* **48**, 470-473.

Niedrig H (1982) Electron backscattering from thin films. *J. Appl. Phys.* **53**(4), R15-R49.

Oatley C W (1981) The early history of the scanning electron microscope. *J. Appl. Phys.* **53**(2), R1-R13.

Oatley C W (1985) The detective quantum efficiency of the scintillator/photomultiplier in the scanning electron microscope. *J. Microscopy* **139**, 153-166.

Ogawa T and Cho B (2015) A new monochromator with multiple offset cylindrical lenses. *Nucl. Instrum.*

Methods Phys. Res. Sect. A **772**, 5-13.

Ogawa T and Cho B (2015) A new monochromator with multiple offset cylindrical lenses 2: Aberration analysis and its applications. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **800**, 18-28.

Paden R S and Nixon W C (1968) Retarding field scanning electron microscopy. *J. Phys E: Sci. Instr.* **1**(11), 1073-1080.

Pease R F W (1967) Low-voltage scanning electron microscopy. *IEEE 9th Annual Symposium on Electron, Ion, and Laser Beam Technology*, 176-187.

Piles E, Degel B, Hayn A, Knell G, Neumann J, and Schiebel B (1999) Experimental results using a “low-voltage booster” in a conventional SEM. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **427**, 126-130.

Plies E, Marianowski K, and Ohnweiler T (2011) The Weil filter: History, fundamentals and modern applications. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **645**, 7-11.

Perovic D D, Castell M R, Howie A, Lavoie C, Tiedje T, and Cole J S W (1995) Field-emission SEM imaging of compositional and doping layer semiconductor superlattices. *Ultramicroscopy* **58**, 104-113.

Reimer L (1998) *Scanning Electron Microscopy –Physics of Image Formation and Microanalysis*. (Springer, Verlag, Berlin, Heidelberg, New York) 2nd ed.

Robinson V N E (1974) The construction and uses of an efficient backscattered electron detector for scanning electron microscopy. *J. Phys E: Sci. Instr.* **8**(8), 650.

Rose A (1952) The visual process. In: *Vision, Human and Electronic*, 1-27, (Plenum Press, New York-London)

Šakić A, Nanver L K, Scholtes T L M, Heerkens C Th H, Veen G van, Kooijman K, and Vogelsang P (2010) Silicon photodiodes for high-efficiency low-energy electron detection. *2010 proceedings of the European Solid-State Device Research Conference*, 102-105.

Sato K (2015) Modern SEM gives rich information –Application of the state of the art SEM to steel research (in Japanese). *Kenbikyo* **50**, 173-179.

Schauer P and Atrata P (1992) Light transport in single-crystal scintillation detector in SEM. *SCANNING* **14**(6), 325-333.

- Scherzer O (1948) The theoretical resolution limit of the electron microscope. *J. Appl. Phys.* **20**, 20-29.
- Scherzer O. (1936) Some defects of electron lenses. *Z. Phys.* **101**(9-10), 593-603.
- Schönjahn C, Humphreys C J, and Glick M (2002) Energy-filtered imaging in a field-emission scanning electron microscope for dopant mapping in semiconductors. *J. Appl. Phys.* **92**, 7667-7671.
- Sealy C P, Castell M R, and Wilshaw P R (2000) Mechanism for secondary electron dopant contrast in the SEM. *J. Electron Microsc.* **49**, 311-321.
- Seiler H (1983) Secondary electron emission in the scanning electron microscope. *J. Appl. Phys.* **54**(11), R1-R18.
- Sekiguchi T and Iwai H (2015) Low-pass secondary electron detector for outlens scanning electron microscopy. *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 088001.
- Suzuki M (2009) Image formation mechanism of scanning electron microscopy for characterization of nanoscale materials. Doctoral thesis in Material Science and Engineering, Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba.
- Swanson L W (1998) A review of the Zr/O Schottky Cathode. In: *Handbook of Charged Particle Optics*, ed. Orloff J, 77-102, (CRC press, New York).
- Tachibana S (2006) Signal detection in a SEM with the magnetic/electrostatic compound lens system. *Kenbikyo* **43**, 174-176.
- Tamura H and Kimura H (1968) New method of detecting secondary electrons on scanning electron microscope. *J. Electron Microsc.* **17**(2), 106-111.
- Tsuno K (1998) Magnetic lenses for electron microscopy. In: *Handbook of Charged Particle Optics*, ed. Orloff J, 143-176, (CRC press, New York).
- Tsuno K (2011) Monochromators in electron microscopy. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **645**, 12-19.
- Tsurumi D, Hamada K, and Kawasaki Y (2012) Energy-filtered secondary-electron imaging for nanoscale dopant mapping by applying a reverse bias voltage. *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 106503.
- Uchikawa Y, Gouhara K, Yamada S, Ito T, Kodama T, and Sardeshmukh P (1992) Comparative study of

electron counting and conventional analogue detection of secondary electrons in SEM. *J. Electron Microsc.* **41**, 253-260.

Ura K (2013) Image contrast of LSI insulators in the SEM: A review (in Japanese). *The 3rd Electron Beam Application Technology Workshop in the Institute of Nano Testing*, 1-38.

Wagner L F and Spicer W E (1972) Observation of a band of silicon surface states containing one electron per surface atom. *Phys. Rev. Lett.* **28**, 1381.

Wagner L F and Spicer W E (1972) Photoemission study of the effect of bulk doping and oxygen exposure on silicon surface states. *Phys. Rev. B* **9**, 1512.

Walker C G H, Zaggout F, and El-Gomati M M (2008) The role of oxygen in secondary electron contrast in doped semiconductors using low voltage scanning electron microscopy. *J. Appl. Phys.* **104**, 123713.

Wolf E D and Everhart T E (1969) Electron beam channeling in single-crystal silicon by scanning electron microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **14**(10), 299-300.

Yamada S, Ito T, Gouhara K, and Uchikawa Y (1991) Electron-count imaging in SEM. *SCANNING* **13**, 165-171.

Yonezawa A, Maruo M, Takeuchi T, Morita S, Noguchi A, Takaoka O, Sato M, and Wannberg B (2002) Single-pole-piece objective lens with electrostatic bipotential lens for SEM. *J. Electron. Microsc.* **51**(3), 149-156.

Young R, Henstra S, Chmelik J, Dingle T Mangnus A, Veen G van, and Gestmann I (2009) XHR SEM: Enabling extreme high resolution scanning electron microscopy. *Proc. of SPIE* **7378**, 737803.

Zach J and Haider M (1995) Aberration correction in a low voltage SEM by multipole corrector. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **363**, 316-325.

Zach J and Rose H (1986) Efficient detection of secondary electrons in low-voltage scanning electron microscopy. *SCANNING* **8**, 285-293.

SEM を用いた pn 接合やドーパント濃度コントラストに関するその他の文献

- Castell M R, Simpson T W, Mitchell I V, Perovic D D, and Baribeau J -M (1999) Deactivation and diffusion of boron in ion-implanted silicon studied by secondary electron imaging. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2304-2306.
- Chee A K W, Broom R F, Humphreys C J, and Bosch E G (2011) A quantitative model for doping contrast in the scanning electron microscope using calculated potential distributions and Monte Carlo simulations. *J. Appl. Phys.* **109**, 013109.
- Cheng T H P and Nixon W C (1967) Electron beam induced potential contrast on unbiased planar transistors. *Solid-St. Electron.* **10**, 701-702.
- Frank L and Müllerová (2005) The injected-charge contrast mechanism in scanned imaging of doped semiconductors by very slow electron. *Ultramicroscopy* **106**, 28-36.
- Frank L and Müllerová (2006) The origin of contrast in the imaging of doped areas in silicon by slow electrons. *J. Appl. Phys.* **100**, 093712.
- Jayakody G H and El-Gomati M M (2003) SE dopant contrast in LVSEM: The effects of surface and vacuum conditions. *Microscopy and Microanalysis 2003*, 389-390.
- Kazemian P, Rodenburg C, and Humphreys C J (2004) Effect of experimental parameters on doping contrast of Si p-n junctions in a FEG-SEM. *Microelectron. Eng.* **73-74**, 948-953.
- Lee J-H and Liu P-T (2012) Surface potential mapping of P+/n- well junction by secondary electron potential contrast with in situ nano-probe biasing. *Microelectr. Eng.* **95**, 5-9.
- Merli P G, Corticelli F, and Morandi V (2002) Images of dopant profiles in low-energy scanning transmission electron microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4535-4537.
- Mika F and Frank L (2008) Two-dimensional dopant profiling with low-energy SEM. *J. Microsc.* **230**, 76-83.
- Müllerová I El-Gomati MM, and Frank L (2002) Imaging of the boron doping in silicon using low energy SEM. *Ultramicroscopy* **93**, 223-243.
- Rodenburg C, Jepson M A E, Bosch E G T, and Dapor M (2010) Energy selective scanning electron microscopy to reduce the effect of contamination layers on scanning electron microscope dopant mapping. *Ultramicroscopy* **110**, 1185-1191.

Schönjahn C, Broom R F, Humphreys C J, Howie A, and Mentink S A M (2003) optimizing and quantifying dopant mapping using a scanning electron microscope with a through-the-lens detector. *Appl. Phys. Lett.* **83**, 293-295.

Suvorova A and Samarin S (2007) Secondary electron imaging of SiC based structures in secondary electron microscope. *Surf. Sci.* **601**, 4428-4432.

Turan R, Perovic D D, and Houghton D C (1996) Mapping electrically active dopant profiles by field emission scanning electron microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1593-1595.

Venables D and Maher D M (1996) Quantitative two-dimensional dopant profiles obtained directly from secondary electron images. *J. Vac. Sci. Technol. B* **14**, 421-425.

Venables D and Maher D M (1996) Quantitative two-dimensional dopant profiles obtained directly from secondary electron images. *J. Vac. Sci. Technol. B* **16**, 362-366.

SEM を学ぶ方々に推薦したい教科書

Goldstein J I, Lyman C E, Newbury D E, Lifshin E, Echlin P, Sawyer L, Joy D C, and Michael J R (2003) *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*. (Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York Boston, Dordrecht, London, Moscow) 3rd ed.

Reimer L (1998) *Scanning Electron Microscopy –Physics of Image Formation and Microanalysis*. (Springer, Verlag, Berlin, Heidelberg, New York) 2nd ed.

Orloff J (1998) *Handbook of Charged Particle Optics*, ed. Orloff J, 143-176, (CRC press, New York).

Khursheed A (2011) *Scanning Electron Microscope Optics and Spectrometers*. (World Scientific, Singapore).

SEM を学ぶ方々にレビューとして推薦したい論文

Oatley C W (1981) The early history of the scanning electron microscope. *J. Appl. Phys.* **53**(2), R1-R13.

Niedrig H (1982) Electron backscattering from thin films. *J. Appl. Phys.* **53**(4), R15-R49.

Seiler H (1983) Secondary electron emission in the scanning electron microscope. *J. Appl. Phys.* **54**(11), R1-R18.

Joy D C (1984) Beam interactions, contrast and resolution in the SEM. *J. Microsc.* **136**, 241-258.

Kruit P (1991) Magnetic through-the-lens detection in electron microscopy and spectroscopy. I. *Advances in optical and electron microscopy* **12**, 93-137.

Howie A (1995) Recent developments in secondary electron imaging. *J. Microsc.* **180**, 192-203.

Joy DC and Joy C S (1996) Low voltage scanning electron microscopy. *Micron* **27**, 247-263.

Cazaux J (1999) Mechanism of charging in electron spectroscopy. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **105**, 155-185

投稿論文

T. Agemura, H. Iwai, and T. Sekiguchi (2017) Development of fountain detectors for spectroscopy of secondary electron in SEM, *Phys. Status Solidi C* **14**, 201700057.

T. Agemura and T. Sekiguchi (2018) Collection efficiency and acceptance maps of electron detectors for understanding signal detection on modern scanning electron microscopy, *Microscopy*, DOI 10.1093/jmicro/dxf124.

T. Agemura, T. Kimura, and T. Sekiguchi, Development of a fountain detector for spectroscopy of secondary electrons in scanning electron microscope, *Jpn. J. Appl. Phys.* (Accepted for publication on Dec. 18th, 2017).

関連投稿論文

T. Agemura, S. Fukuhara, and H. Todokoro (2001) Measurement technique for the incident electron current in secondary electron detectors and its application in scanning electron microscopes. *SCANNING* **23**, 403-409.

社外発表

揚村寿英、岩井秀夫、関口隆史：アウトレンズ型低エネルギー二次電子検出器の開発、第 72 回日本顕微鏡学会学術講演会 (2016).

関口隆史、木村隆、岩井秀夫、揚村寿英：噴水検出器による半導体・金属・絶縁体の二次電子観察、第 72 回日本顕微鏡学会学術講演会 (2016).

関口隆史、揚村寿英、木村隆、岩井秀夫：噴水検出器による絶縁体の二次電子観察、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 (2016).

関口隆史、岩井秀夫、揚村寿英、木村隆：斜め研磨を用いた GaN 表面のカソードルミネッセンス観察、第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (2017).

揚村寿英、木村隆、岩井秀夫、関口隆史、：噴水検出器による二次電子観察、第 73 回日本顕微鏡学会学術講演会 (2017).

関口隆史、揚村寿英、岩井秀夫：倒立型噴水検出器によるナノシートの低エネルギー透過電子観察、第 73 回日本顕微鏡学会学術講演会 (2017).

岩井秀夫、揚村寿英、木村隆、関口隆史、：アウトレンズタイプ SEM 用低エネルギー SE 検出器の開発と応用例、共用・計測合同シンポジウム 2017 (2017).

T. Sekiguchi, H. Iwai, T. Agemura, and T. Kimura, Low energy secondary electron imaging for various semiconductors using fountain detector, *The 2nd. East-Asia Microscopy Conference* (2015).

T. Agemura, H. Iwai, T. Kimura, and T. Sekiguchi, Development of a low energy secondary electron detector for out-lens SEM and its application of semiconductor heterostructures, *13th International Conference on Beam Injection Assessment of Microstructures in Semiconductors* (2016).

T. Agemura, H. Iwai, T. Kimura, and T. Sekiguchi, Development of a Fountain detector for spectroscopy of secondary electrons in SEM, *Microscopy and Microanalysis 2017* (2017).

T. Sekiguchi and T. Agemura, Development of a fountain detector for spectroscopy of secondary electrons in SEM, *17th Conference on Gettering and Defect Engineering in Semiconductor Technology* (2017).

T. Sekiguchi and T. Agemura, Secondary electron imaging of Si device structures using fountain detector, *17th Conference on Gettering and Defect Engineering in Semiconductor Technology* (2017).

T. Agemura and T. Sekiguchi, Development of a fountain detector for spectroscopy of secondary electrons in SEM, *17th Conference on Defects – Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors* (2017).

関連社外発表

揚村寿英：SEM の検出系とアクセプタンス、第 68 回日本顕微鏡学会学術講演会 (2012).

謝辞

本論文は、著者が(株)日立ハイテクノロジーズに在職しながら、筑波大学数理物質科学研究科物質・材料工学専攻に在学し、同研究科 関口 隆史教授のご指導の元で遂行した研究の成果をまとめたものであります。この3年間、多くの方々のご指導、ご尽力、ご協力、ご助言を頂きながら、ここに本論文を提出するに至りました。この場をお借りし、厚く御礼申し上げます。

まず初めに、本論文の査読を務めて頂いた筑波大学数理物質科学研究科物質・材料工学専攻 関口 隆史教授に心より深く感謝申し上げます。本研究を遂行し、また本論文をまとめるにあたり、著者が所属する会社の立場、状況をご理解頂きながら、終始懇切丁寧なご指導、ご鞭撻、ご尽力を賜りました。また2014年12月に先生にお声かけ頂かなければ、この3年間の貴重な経験と皆様との出会いは実現できませんでした。ここに再度、深謝の意を表すとともに、先生の今後の益々のご活躍とご健勝をお祈り申し上げます。

また、筑波大学数理物質科学研究科ナノサイエンス・ナノテクノロジー専攻 末益 崇教授、同研究科物質・材料工学専攻 深田 直樹教授、同専攻 橋本 綾子准教授には、本論文の審査を頂くとともに、多くの有益なご助言を賜りました。ここに深く感謝申し上げます。

物質・材料研究機構技術開発・共通部門材料分析ステーション表面・微小領域分析グループの 岩井 秀夫 博士には、噴水型二次電子検出器の実験・評価を進めるにあたり、多くのご議論、ご助言を頂きました。また、同機構国際ナノアーキテクトニクス半導体デバイス材料グループの木村 隆博士には、試料の製作、装置の操作、データ解析の依頼など、多大なご協力、ご尽力を頂きました。ここに深く感謝申し上げます。

産業技術総合研究所物質計測標準研究部門表面・ナノ分析研究グループの熊谷 和博博士には、オミクロン社製の NanoSAM Lab system の操作方法を丁寧にご教示頂きました。また、アクセプタンスに関して多くのご議論を頂きました。アプロ(株)の森口 幸一取締役には、噴水型二次電子検出器の試作・改造・改良・実験に終始、親切、丁寧にご対応頂きました。また、東北大学金属材料研究所テクニカルセンター機器開発技術グループの皆様には、噴水型二次電子検出器の球面グリッドの製作を、試行錯誤を繰り返しながら根気良くご対応頂きました。ここに深く感謝申し上げます。

日本顕微鏡学会「SEMの物理学」分科会では、JFEスチール株式会社スチール研究所分析・物性研究部 青山 朋宏博士、JFEテクノリサーチ株式会社 佐藤 馨フェロー、大阪府立大学工学研究科電子物理工学分野プロセス物理グループ 安田 雅昭准教授、九州大学総合理工学府量子量子プロセス理工学専攻 板倉 賢准教授、日本電子株式会社経営戦略室 須賀 一雄博士、旭化成株式会社基盤技術研究所技術グループ 永富 隆清博士に多くのご議論、ご助言を頂きました。ここに感謝申し上げます。

株式会社日立ハイテクノロジーズ科学システム製品本部執行役兼本部長 伊東 祐博氏には、大変貴重な研究機会を頂き、3年に渡り、多大なご理解、ご支援を賜りました。ここに心より深く感謝申し上げます。また、同社同本部電子顕微鏡第一設計部部長 飯泉 謙氏、同社同本部ソリューションシステム設計部部長 川俣 茂氏、同社電子顕微鏡第一設計部 FE-SEM 開発グループ統括主任技師 片根 純一氏とグループ員の皆さん、同社電子顕微鏡第二設計部の皆さんには、著者の不在が多い中、多大なご支援、ご協力を頂きました。心より感謝申し上げます。同社同本部主管技師 小瀬 洋一氏には、アクセプタンスと収集効率をシミュレーションするにあたり、同氏が開発されましたソフトの使用を許可して頂きました。厚く御礼申し上げます。また、同社科学システム営業本部マーケティング部課長 立花 繁明氏には、旧 SII-NT 社の頃から会社の枠を越えて、日本顕微鏡学会「SEMの物理学」分科会を通じて多くのご議論、ご助言を頂きました。心より感謝申し

上げます。

物質・材料研究機構国際ナノアーキテクトニクス半導体デバイス材料グループ主任研究員の Jun Chen 博士、Yujin Cho 博士、Wei Yi 博士、Yuanzhao Yao さん、また、グループを去られました高瀬 雅美さん、現山形大学の Karolin Jiptner 博士、現 Sun Disc の Ronit Prakash 博士、現大阪大学の渡辺 健太郎博士、現九州大学の原田 博文博士、宮村 佳児博士には、本研究を推進するにあたり、多くの激励、ご協力を頂きました。また、同グループ秘書の塔村 和子さんには、社会人博士が故に情報伝達がままならない状況で大変ご苦勞をおかけいたしました。また、論文の投稿、出張旅費の精算、実験部品購入、学会分科会活動のサポートなどでも多くのご尽力を頂きました。3 年間の研究生活を楽しく過ごせたのは、全てグループメンバー皆様のご支援によるところであります。ここに深く感謝の意を表します。

皆様、本当にありがとうございました。

最後に、会社生活との両立のため、休日の研究活動が多くなった我慢を強いる生活環境の中、3 年間終始支えとなってくれた妻 京子に、“ありがとう”の言葉を添えて、本論文を結びたいと思います。

平成 30 年 1 月 19 日

揚村 寿英