講 座

電子銃・電子源(前篇)一物理・光学的基礎一

Electron Source Technology 1-physics and optics-

下山 宏^ª,藤田 真^b

Hiroshi Shimoyama and Shin Fujita

^a名城大学名誉教授

^bShimadzu (Asia Pacific) Pte Ltd.

要旨「電子源・電子銃」をテーマに2回に分けて概説する.前篇(本講座)では電子源の基本特性,特に軸上(理論)輝度と電子放出モードについて解説を行う.透過型/走査型電子顕微鏡はともに電子源を高輝度化することでその性能を大きく向上させた.軸上輝度はほぼ陰極電子流密度によって決定され,高輝度電子源の実現とは高電子流密度を提供できる陰極の開発であることを示す.陰極電子流密度は、「仕事関数」「陰極温度」ならびに「電界強度」の関数であり、これらの動作条件が電子放出モードを決める.熱電子放出、ショットキー放出、電界放出の各モードについて電子流密度の動作パラメータ依存性と期待される輝度を示す.電界印加により電子流密度が大幅に向上することが分かる.

キーワード:輝度、電子放出モード、仕事関数、陰極温度、電界強度

1. はじめに

電子顕微鏡(以下,電顕と略記)の発展の歴史を装置開発の 観点から眺めた時に,要素技術としての電子源(電子銃)の発 展が,対物レンズ,観察・記録系,高圧電源などの要素技術の 発展と共に,極めて大きな役割を担ってきたと言うことがで きる.電顕の分解能の向上と共に分析機能やホログラフィー の性能向上が求められる中で,より高輝度でより干渉性の優 れた電子源の開発が常に求められてきた.特に最近では,(3 次の)球面収差ならびに色収差が補正された対物レンズを備 えた電顕が実用化され,水素やリチウムなどの軽元素の原子 コラムならびに50 pmを凌ぐ格子分解能の観察が可能となっ た現在,新たな観点で電子銃の課題を見つめ直す必要がある.

電顕は大別して、透過形電顕(TEM)や電子線ホログラフィーに代表されるレンズ結像型と、走査型電顕(SEM) や走査透過型電顕(STEM)に代表されるプローブ形成型に 分類されるが、両者では照射系を含めた電子銃光学系に対す る要求の内容が異なる.図1に両者の要求を比較する.一 般に、レンズ結像型では「より明るく、より干渉性良く」試 料を照射することが望まれ、プローブ形成型では「より微小 で、より高電流を」備えた電子線プローブ(= spot)を作成 することが望まれる.いずれの場合にも、これらの要求を実 現するには高輝度電子銃が不可欠である.しかし、電子銃の

^b79, Science Park Drive #02-01/08, Cintech IV, Singapore Science Park 1, Singapore 118264 TEL: +65-6778-6280; FAX: +65-6778-6901 E-mail: fujita@shimadzu.com.sg 2017 年 8 月 31 日受付, 2017 年 11 月 17 日受理 性能を評価する際には、輝度が高いということのみでなく、 以下の項目を「電子銃の性能評価項目」として同時に考慮す る必要がある.すなわち、

- (1) 高輝度・大プローブ電流の同時達成
- (2) 小さいエネルギー幅
- (3) 動作の安定性
- (4) 長寿命

上記4項目は高性能電子銃開発のための基本的指針と考える ことができ、それぞれを支配する要因を理論的・実験的に明 らかにしていくことが重要である.

本講座(前篇)では,まず電子銃の基本的性能を表す電子 光学的輝度の概念について述べ,代表的な電子放出モードと



図1 レンズ結像系, プローブ・フォーミング系の電子銃光学 系に対する要求の比較 それぞれから期待される理論輝度やエネルギー幅について解 説する. 陰極材料の仕事関数 ϕ_W [eV], 陰極温度 T [K], 陰極表面の電界強度 F [V/cm]の関数として輝度および放 出電子のエネルギー分布が決まることを示す.

後篇では,大プローブ電流の取出しに必要な光学設計の 方法論と電子銃の安定動作に不可欠な真空技術について解説 する.

2. 電子光学的輝度の概念と理論輝度

電顕などの電子線応用装置の光源として用いられる電子銃 は、光学顕微鏡の光源とは違ったいくつかの特徴的な問題点 を有している.

レンズ結像型電顕の例として、最近の TEM では直接倍率 が数百万倍という高倍率で動作させる場合も多く、電子銃は それに見合った充分な明るさ、即ち電子流密度を保証するも のでなければならない.それと同時に、できる限り干渉性良 く(即ち、平行ビームに近い形で)試料を照射する必要があ り,試料照射角(=試料上の1点から電子線 spot を見込む角) は少なくとも10⁻⁵ rad のオーダーであることが必要である. 電子線ホログラフィーの場合には、なお数桁小さな照射角が 必要となる.このような場合に、電子流密度と電子線照射角 (=電子線開き角)とを同時に考慮した電子光学的輝度と呼 ばれる量を用いるのが便利である(図1(a)参照).

STEM や SEM のようなプローブ形成型電顕の場合には, 試料上にできるだけ微小な電子線プローブ(プローブ径)を 作成することが要求されると同時に,プローブ中に含まれる 電子流(=プローブ電流)も充分大きい必要がある.即ち, できるだけ電子流密度の大きい微小プローブを作成すること が要求される.この場合,プローブ形成レンズの収差の影響 を抑えるために電子線収束角を制限する必要がある(図1(b) 参照).収差補正のない(3次の収差が存在する)プローブ 形成レンズの場合,この電子線収束角は数 mrad 程度であり, 収差補正 STEM の場合であっても,残存する5次の収差の 影響を抑えるために電子線収束角を数十 mrad 程度に制限す る必要がある.したがって,STEM や SEM の場合にも,電 子流密度と電子線収束角とを同時に考慮した電子光学的輝度 が重要になる.

光軸に垂直な平面上において、光軸から ρ の距離にある点 Pを考える(図2(a)参照). 点Pのまわりの微小面積 dS を通って、その法線方向と角度 α をなす方向を囲む微小立体 d Ω の中へ流れ込む電子流を d^2I とすると、点Pにおける α 方向の電子光学的輝度(Electron Optical Brightness) は次の ように定義される:

$$B(\rho, \alpha) \equiv \frac{d^2 I(\rho, \alpha)}{d\Omega dS \cos \alpha} \quad [A/cm^2 sr]$$
(2.1)

また、回転対称な電磁界を用いた多くの電子線応用装置で 重要なのは、光軸上の点 ($\rho = 0$) における光軸方向 ($\alpha = 0$) の輝度:



(a) 電子光学的輝度の定義



(b) (軸上) 平均輝度

図2 軸上(理論)輝度と平均(実効)輝度

$$B_0 = B(0,0) \equiv \frac{d^2 I(0,0)}{d \Omega d S} \quad [A/cm^2 sr]$$
(2.2)

で、これを軸上輝度(Axial Brightness)と呼んでいる. これ らの量は無限に小さい d Ω と dS に関するものであるが、実 際に我々が使用する電子線は、光軸のまわりの有限の面積範 囲 $\Delta S = \pi r^2$ と立体角範囲 $\Delta \Omega = \pi a^2$ を通過する電子流 ΔI で あるので、(2.2) 式に対応して、単位立体角あたりの電子流 密度である輝度として次式を考える(図 2 (b) 参照):

$$\overline{B_0} = \frac{\Delta I}{\Delta \Omega \Delta S} = \frac{\Delta I}{\pi r^2 \pi \alpha^2} \quad [A/cm^2 sr]$$
(2.3)

上式の輝度 $\overline{B_0}$ は、面積 ΔS と立体角 $\Delta \Omega$ について平均された 輝度という意味で、厳密には(軸上)平均輝度(Mean Brightness or Average Brightness) と呼ばれるべき量であるが、多 くの場合、単に輝度(Brightness)と呼ばれることが多い.

(2.2) 式で定義される軸上輝度 B₀の値は、陰極の前面に おいて空間電荷効果が無視できる場合には、陰極面から放出 される電子の初速度分布と加速電圧のみによって一義的に定 まる量であって、電子銃の理論的に期待される最高輝度であ り、その途中の(filter 作用のない)電子光学系をどのよう に変化させたとしても一定不変に保たれる性質を有してい る. この性質は電子光学において非常に有用かつ重要なもの で,輝度不変の法則(brightness invariancy)と呼ばれている. しかし、(2.3) 式で定義される平均輝度 万値は一般に電子光 学系の収差の影響を受けるので、不変性を適用すると大きな 誤りを犯すことがある. 特に電界放出電子銃などのように 元々の光源サイズが極めて小さい場合には、ビーム電流を多 く得ようとして電子線取り込み角を大きくすると、収差の影 響を受けて見かけ上光源サイズが大きくなり、潜在的に高い 筈の輝度の値が大きく低下することになる. 輝度低下の詳し いメカニズムについては後篇で解説する.

軸上輝度 B₀ は電子銃の理論的に期待される最高輝度であり,使用している装置の最高性能を決定する重要な要因の一

つであるので、各種の電子銃のそれぞれの動作条件に対して、 軸上輝度 B_0 の値がどのようになるのかを知っておくことは 重要なことである.軸上輝度は一般に、

$$B_0 = \frac{e\Phi}{\pi G} j_0 \quad [\text{A/cm}^2 \text{sr}]$$
(2.4)

の形に書けることを理論的に導くことができる¹⁾. ここで j_0 [A/cm²] は陰極面上の放出電子流密度で,熱電子放出(TE) の場合は陰極温度 T [K] と陰極材料の仕事関数 ϕ_w [eV] に より,またショットキー放出(SE),熱電界放出(T-FE),電 界放出(FE)の場合には,これに加えて陰極表面の電界強度 F [V/cm] により定まる. TE の場合には $j_0 = 1 \sim 50$ [A/cm²], SE の場合にはこれより 1 ~ 3 桁大きく,FE や T-FE の場合 にはこれよりさらに 2 ~ 3 桁大きい. G [eV] は放出電子の エネルギー分布に関係した値で,TE,SE,FE いずれの場 合にもほぼ10分の数 eV 程度の値である. ϕ は加速電圧 ϕ [V] を示す.軸上輝度は陰極の物性と加速電圧のみで決まり,光 源サイズなどの電子銃の光学的な特性とは直接関係しない.

(2.4) 式の分子の e^{ϕ} は、軸上輝度が加速電圧(電子ビームエネルギー)に比例することを示すので電子銃の特性を 論じる際には、(2.4) 式を加速エネルギー e^{ϕ} [eV] で割っ た次式で与えられる換算軸上輝度(reduced axial brightness) β_0 [A/cm² eV sr] を用いると便利である:

$$\beta_0 \equiv \frac{B_0}{e\Phi} = \frac{j_0}{\pi G} \quad [\text{A/cm}^2 \text{ eV sr}]$$
(2.5)

ここで、分母の πG はほぼ1 [eV] に等しいので、(2.5) 式の換算軸上輝度は実際上は、

$$\beta_0 \approx j_0 \quad [\text{A/cm}^2 \text{ eV sr}]$$
 (2.6)

と見なして差し支えない.

(2.5), (2.6) 式で与えられる換算輝度 (reduced brightness) は,加速電圧に依存せず,電子銃固有の特性を示す量 であるので,各種電子銃の性能の相互比較の際に有用である.

3. 固体からの電子放出

(2.5) 式から明らかなように、換算軸上輝度 β_0 は、陰極面上の放出電子流密度 j_0 および放出電子のエネルギー分布に関係した量Gを算出すれば求められる.以下では、熱電子放出(TE)、ショットキー放出(SE)、電界放出(FE)、熱電界放出(T-FE)など、陰極からの各電子放出モードについて解説し、各モードでの動作特性把握に有効な電子流密度プロットを紹介する.

3.1 自由電子モデル

図3は、陰極(金属)表面付近の電子のエネルギー・ダ イアグラムを自由電子モデルに基づいて示したものである. 縦軸をエネルギーにとり、金属内部はz < 0に、金属外(真空) はz > 0に対応し、z = 0が金属表面、即ち電子放出面である.



図3 金属内電子の自由電子モデルに基づくエネルギー・ダイ アグラムおよび金属表面近傍に生ずるポテンシャル障壁の様子

金属内 (z < 0) では、電子の実効的なポテンシャル・エネ ルギーは $U(z) = -U_0$ (一定値) である. 今,金属表面 (z = 0) に電界 F が印加された状態を考えると、金属外 (z > 0) に おいては、電子の鏡像力に基づくポテンシャル・エネルギー $-e^2/16\pi\epsilon_0 z$ と外部印加電界 F に基づくポテンシャル・エネル ギー -eFz の合成として、金属表面近傍にポテンシャル障壁 U(z) が生じる. 即ち:

$$U(z) = -e^{2}/16\pi\varepsilon_{0}z - eFz \quad (z > 0)$$

$$U(z) = -U_{0} \quad (z < 0) \quad (3.1)$$

ただし、 ε_0 は真空の誘電率である. エネルギーが0の基準は 真空準位と呼ばれ、電界のない時に金属表面から充分離れた 電子の持つポテンシャル・エネルギーが0となるように選ば れている. 真空準位とフェルミ準位 E_F のエネルギー差が仕 事関数 ϕ_w [eV] である.

3.2 熱電子放出(TE)

金属表面に外部電界が印加されていないとき(即ちF = 0のとき)、金属表面近傍のポテンシャル障壁は鏡像力に基づ くポテンシャル・エネルギーのみとなり、金属内部の自由電 子から見たポテンシャル障壁の高さは実質的に仕事関数 ϕ_w [eV] となる.金属の温度が充分低いときは、金属内の自由 電子のエネルギーはフェルミ準位 E_F 以下であるので、金属 内の電子はこのポテンシャル障壁のために金属外に出ること はできない、しかし、陰極が加熱されると、金属内自由電子 は熱的に励起され、仕事関数 ϕ_w [eV] のポテンシャル障壁 を乗り越えるだけの熱エネルギーを得た電子は金属外(真空 中)に出て行くことができるようになる.これが熱電子放出 に対応する(図4(a)参照).

熱電子放出モードでの電子流密度は Richardson-Dushman の式で与えられる:

$$j_{0T} = AT^2 \exp\left(-\frac{\phi_W}{k_B T}\right) \tag{3.2}$$

ここで、 $k_{\rm B}$ はBoltzmann 定数(= 8.617 × 10⁻⁵ [eV/K]) を、



図4 各電子放出モードにおけるエネルギー・ダイアグラムと放出電子特性の比較



 $A = 4\pi mek_B^2/h^3$ は Richardson 定数 (= 120.2 [A/cm²K²]) をそれぞれ表す.

いま, X = 1/T, $Y = \log_{10}(j_{0T}/T^2)$ とおいてプロットを取る と Richardson プロットが得られる(図 5):

$$Y = \log_{10}A - 5.04 \times 10^3 \phi_{\rm W} \cdot X \tag{3.3}$$

傾きより仕事関数 φ_w を導出することができる.

3.3 ショットキー放出(SE)

金属表面に $F = 1 \times 10^6 [V/cm]$ 程度の電界が印加されると,

図4 (b) に示されるように、ポテンシャル障壁の高さが $\Delta \phi_w$ [eV] だけ低下することになる. つまり、仕事関数が印 加電界の効果により $\Delta \phi_w$ [eV] だけ減少し、実質的に($\phi_w - \Delta \phi_w$) [eV] になったことを意味する. この効果(=ショットキー 効果(Schottky effect))によって熱電子放出が一段と促進さ れることになる. これがショットキー放出に対応する.

ショットキー効果による仕事関数の減少分は、印加電界 Fを [V/cm] で表すと:

$$\Delta \phi_W = \sqrt{e^3 F / 4\pi\varepsilon_0} = 3.795 \times 10^{-4} \sqrt{F} \quad [eV] \tag{3.4}$$

で与えられる.また、ポテンシャル障壁の頂上のz座標(= 金属表面からの距離)は以下となる:

$$z_m = \sqrt{e/16\pi\varepsilon_0 F} = 1.879 \times 10^3 / \sqrt{F} \quad [nm] \quad (3.5)$$

ショットキー放出モードでの電子流密度は Richardson-Dushman の式で、仕事関数を($\phi_w - \Delta \phi_w$)で置き換えること で得られる:

$$j_{0S} = j_{0T} \exp\left(\frac{\Delta\phi_W}{k_B T}\right) \tag{3.6}$$

仕事関数の減少分 $\Delta \phi_w$ は (3.3) 式で与えられるので、いま、 $X = \sqrt{F}$, Y = log₁₀(j_{0s}) とおいてプロットを取ると Schottky プロットが得られる (図 6):

$$Y = \log_{10} j_{0T} + \frac{1.913}{T} \cdot X$$
 (3.7)

Schottky プロットの傾きは、陰極温度Tのみに依存し仕事

関数 Øw には依存しない.

3.4 電界放出(FE)

金属表面により強い電界(例えば $F = 5 \times 10^7$ [V/cm] 程度) が印加されると、図4(d)に示すように、ポテンシャル障 壁の幅が狭くなり、金属が加熱されなくても、電子の波動性 に基づく量子力学的なトンネル効果によって、金属内電子は ポテンシャル障壁の頂上を越えることなく直接ポテンシャル 障壁を透過して金属外に脱出することができるようになる. これが電界放出に対応する.

トンネル効果で重要なポテンシャル障壁の幅はおよそ $2z_m$ 程度と考えられる. (3.5) 式より陰極表面電界強度が $F = 5 \times 10^7$ [V/cm] 程度になると、ポテンシャル障壁の幅は $2z_m = 0.54$ [nm] 程度に薄くなっていることが分かる.

電界放出モードでの電子流密度は Fowler-Nordheim の式で 与えられる(低温近似):

$$j_{0F} = AT_c^2 \exp(-c) \tag{3.8}$$

ここで, T_cは特性温度:



$$T_{c} = \frac{heF}{4\pi\sqrt{2m}k_{B}\sqrt{\phi_{W}}t(y_{W})} = 1.133 \times 10^{-4} \frac{F}{\sqrt{\phi_{W}}t(y_{W})}$$

を表し,また,

$$c = \frac{8\pi\sqrt{2m\phi_{W}^{3}v(y_{W})}}{3heF} = 6.831 \times 10^{7} \frac{\sqrt{\phi_{W}^{3}}v(y_{W})}{F}$$

である. *h* は Planck 定数を示す. $t(y_w)$ および $v(y_w)$ は $y_w = \Delta \phi_w / \phi_w$ の関数,即ち電界 *F* の関数であるが, $t(y_w)$ は実質的 に 1 に等しく, $v(y_w)$ は 0 ~ 1 の範囲で緩やかに変化する関数である. いま, X = 1/F, $Y = \log_{10}(j_{0F}/F^2)$ とおいてプロットを取ると F-N プロットが得られる (図 7):

$$Y = \log_{10} B - 2.967 \times 10^7 \phi_W^{3/2} \cdot X \tag{3.9}$$

プロットの傾きは仕事関数 Øw の関数となる.

3.5 熱電界放出(T-FE)

熱電界放出と呼ばれる状態は、上記ショットキー放出と電 界放出の中間的な状態、即ち適当な温度と電界の存在する状 態において、ポテンシャル障壁の頂上を乗り越えていく電子 と透過して行く電子が同時に存在するような状態を指してい る(図4(c)参照).

4. 放出モードと軸上輝度,エネルギー幅の関係

TE, SE, FE, T-FE といった電子放出モードとそれに伴う陰 極種類の分類は、仕事関数 ϕ_w [eV]、陰極温度 T [K]、なら びに電界強度 F [V/cm] といった陰極の動作条件のちがい によるものであることを前節に述べた.

一方,電子源の最も重要な特性となる軸上換算輝度 β_0 は 任意の動作条件 (ϕ_w, T, F)の関数として理論的に計算する ことができる^{2,3}. 一般的な電子放出条件の中で各種電子源



図8 陰極温度, 電界強度と軸上換算輝度の関係

北				
陰極	仕事関数 ∳ _w [eV]	陰極温度 <i>T</i> [K]	電界強度 F [V/cm]	換算軸上輝度 β ₀ [A/cm ² V sr]
W熱陰極	~ 4.5	\sim 2,800		~ 10
LaB6 熱陰極	~ 2.6	\sim 1,900	—	$50 \sim 100$
Zr-O/W(100) Schottky emitter	2.95-3.00	1,700-1,800	$(0.5-1) \times 10^7$	$10^3 - 10^4$
W $\langle 310 \rangle$ field emitter	4.16-4.34	300	$(4-5) \times 10^{7}$	$10^{5} - 10^{7}$

主1 仕主的た险塩の柱体比較



図9 電子放出モードと全エネルギー幅

がどこに位置づけられ、またその軸上換算輝度が相対的にど のような値をとっているのかを理解しておくことは電子銃設 計において重要である. 図8に仕事関数を $\phi_w = 4.5$ [eV] と したときの軸上換算輝度 β_0 [A/cm² eV sr] をいくつかの電界 強度F [V/cm] について陰極温度T [K] の関数として計算 した結果を示す. この図でF = 0 [V/cm] は純粋な熱電子放 出(TE) の場合に、T = 0 [K] に対応する値は純粋な電界 放出モード(FE) に対応する. 当然のことながら電界の強 い場合に比べて弱い場合には温度の影響が顕著である.

ショットキー放出,熱電界放出モードに対応する動作条件 は TE と FE の中間に位置している.電子放出モードによる 軸上換算輝度(電子流密度)の陰極温度,電界強度への依存 性の違いが図8より理解できる.

図9に仕事関数を $\phi_w = 4.5$ [eV] としたときの電子ビーム のエネルギー分布の計算結果をいくつかの陰極温度T, 電界 強度Fについて示す. 縦軸はそれぞれの分布関数の最大値 が等しくなるよう規格化されている. Fermi エネルギー E_F とポテンシャル障壁の頂上に対応する V_m を点線で併記した. 陰極からの放出電子の全エネルギー分布は温度,電界強度に 大きく依存するため,電子ビームのエネルギー幅は放出モー ドによって異なることが分かる.

TE, SE, FE 電子放出モードを代表する陰極として、それ ぞれ、W 熱陰極、LaB6 熱陰極、Zr-O/W(100) ショットキー 陰極、W \langle 310 \rangle フィールドエミッターについてその動作条 件 (ϕ_w , *T*, *F*) と換算軸上輝度を表 1 に示す。熱電子放出モー ドと比べ、電界印加による Schottky/Tunneling 効果を利用し たショットキー陰極やフィールドエミッターで実現できる換 算軸上輝度が桁違いに大きいことが分かる。

5. まとめ(前篇)

電子源の基本特性,特に軸上(理論)輝度と電子放出モー ドについて解説を行った.軸上輝度はほぼ,陰極電子流密度 によって決定される.高輝度電子源の実現には高電子流密度 を提供できる陰極が必要である.陰極電子流密度は,「仕事 関数」「陰極温度」ならびに「電界強度」の関数となる.こ れらの動作パラメータが電子放出モードを決める.熱電子放 出,ショットキー放出,電界放出の各モードについて電子流 密度の動作パラメータ依存性と期待される輝度を示した.電 界印加により電子流密度を大幅に上げることができる.

「後篇」では、平均輝度の低下メカニズム、真空技術といっ た電子銃設計の実際に関連する事項について解説する.

献

文

- Shimoyama, H., Ohshita, A. and Maruse, S.: *Japan J. Appl. Phys.*, 11, 150 (1972)
- 2) 下山 宏:電子顕微鏡, 10, 76-86 (1975)
- Shimoyama, H. and Maruse, S.: Ultramicroscopy, 15, 239–254 (1984)