

# 生物電子顕微鏡のためのナノ構造光陰極型超コヒーレント電子源の開発 DEVELOPMENT OF ULTRA COHERENT ELECTRON SOURCE WITH NANO- STRUCTURED PHOTOCATHODE FOR BIO-ELECTRON MICROSCOPY

澁谷達則<sup>#, A)</sup>, 吉田光宏<sup>B)</sup>, 林崎規託<sup>C)</sup>

Tatsunori Shibuya<sup>#, A)</sup>, Mitsuhiro Yoshida<sup>B)</sup>, Hayashizaki Noriyosu<sup>C)</sup>

A) Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology

B) Accelerator Division, High Energy Accelerator Research Organization, KEK

C) Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology

## Abstract

It is possible that a low energy electron microscopy directly observes atomic-scale individual DNA without its destruction. However, the spatial resolution and the image contrast are limited by the available quality of the field electron emission. In this paper, we propose novel electron microscopy by backside-illuminated photoemission to emit electrons from nanostructure because of higher spatial resolution and shorter exposure time. The role of a nanostructured photoemission are classified into two parts, "photoemission" and "nanostructured". Photoemission part makes it possible to emit electrons with small energy dispersion, and nanostructured part can achieve a small beam size as a field electron emission. The nanostructured photocathode mainly will be fabricated by FIB and plasma sputtering instruments. Here we report some parameters of the nanostructured photocathode obtained by these instruments; the cathode thickness should be under 30nm and electron emission size is achieved about 70nm. We are planning to be equipped with low energy electron microscopy into the next step.

## 1. はじめに

透過型電子顕微鏡や X 線自由電子レーザーは、原子分解能での DNA や蛋白質の構造解析が可能な観測プローブであるが、観測とほぼ同時に生体細胞が放射線損傷の影響を受けるため、破壊されてしまう。そのため、X 線自由電子レーザーでは、レーザーの超短パルス化によって破壊前の 10fsec 以内の撮像を目指して観測が行われている。しかし、光子と軽元素の反応断面積 (~8 barns) が小さいことから、観測対象物が DNA のような数 nm 領域となると、単一ショットの撮像はほぼ不可能となる。これらのことから、生体細胞を一万ショット程度平均化することで構造解析が行われている。

近年、Germann[1]の報告により、50~250eV の低速電子を照射すると、細胞へエネルギー損失を 7%以下に抑えることができることが示され、結果として高いコントラストでの単一 DNA の回折像やホログラム像を原子分解能で得られる可能性がでてきた。この低速電子を応用した電子顕微鏡が Taniata [2]によって報告されており、現在までに達成されている空間分解能は最大で 7Åである。この分解能値は de Broglie 波長の限界から考えれば、10 倍程度改善できるものと考えられている。この空間分解能が 7Å程度で制限されている理由は、外部ノイズ (CCD ノイズ、電源ノイズ、環境磁場ノイズ、電界電子放出ショットノイズ等) による信号の劣化、フィールドエミッターの先端が残留振動によって数 nm 程度振動していること、また電子放出による初期のエネルギー分散が 0.2eV 程度存在していること等が主な原因である。

生体観測における空間分解能をさらに高めるため

には、外部ノイズに対する電子ビーム信号の S/N 比を向上するために高い電流密度を達成することと低エネルギー分散の電子ビームを生成することが求められている。

## 2. 高品質電子ビーム生成

低エミッタンス且つ大電流密度の電子ビームを光電子放出で生成する場合、(i) 電子光源サイズの極小化、(ii) レーザー強度の高強度化、(iii) 光子エネルギーと仕事関数の近接化、が必要である。ここでは、主に、特に光陰極材の性能として満たす必要がある (i) について述べる。

### 2.1 背面照射による薄膜金属陰極と陰極材のナノ構造化

電子放出過程は、Bulk Photoemission と Surface Photoemission に大別される。Bulk Photoemission とは、物質内部の電子が入射光子によって励起され、拡散した電子が表面ポテンシャルを超えるような電子放出過程である。ここでは実用上の理由から Bulk Photoemission に限定して考察する。光電子放出の陰極材料を評価する指標の一つとして量子効率 (Quantum Efficiency : QE) を用いる。これは、「陰極表面から放出される電子数 / 入射されるレーザー光の光子数」を与える量であり、電子放出の効率を表す指標である。量子効率は Dowell[3]によって近似式が与えられている。

$$QE(\omega) \approx [1 - R(\omega)] F_{e-e}(\omega) \frac{(\hbar\omega - \phi_{eff})^2}{8\phi_{eff}(E_F + \phi_{eff})} \quad (1)$$

ここで、 $R(\omega)$ は反射率、 $F_{e-e}(\omega)$ は励起電子が電子-電子散乱せずに陰極表面に達する確率、 $E_F$ はフェルミエネルギーを表す。また、 $\phi_{eff}$ は実効的な仕事関数として

$$\phi_{eff} = \phi_w - 0.037947 \sqrt{E_{ext} [MV/m]} eV \quad (2)$$

と表される。ここで、 $\phi_w$ は正味の仕事関数、 $E_{ext}$ は陰極表面に印可された外部電場を表す。この量は、 $F_{e-e}(\omega)$ の式変形を行うことで、レーザーを前面照射か背面照射の選択を行うことができる。

本研究では、実用上、レーザーの短焦点化するために、放出電子とは幾何学的に干渉しない背面からのレーザー照射を採用した。背面照射型の光陰極で達成できる最小スポット径は、 $1\mu m$ 程度である。これは、紫外線帯域の対物レンズによって決定されている。そのため、現在、光電子放出によって達成できる電子ビームサイズは $1\mu m$ である。

さらに本研究では、微細構造体によってレーザーの回折限界スポット径に依存しない光陰極を開発する。微細構造体からの光電子放出とは、高仕事関数の材料にエミッタ材となるナノ粒子を埋め込んで、レーザー波長未満 ( $200nm$  以下) のナノ粒子から電子放出を行うというものである。この方法では、高仕事関数のベース材は電子を放出しないために光源サイズはレーザーのスポット径に依存せず、ナノ粒子のサイズまで電子光源サイズを極小化することが可能である。

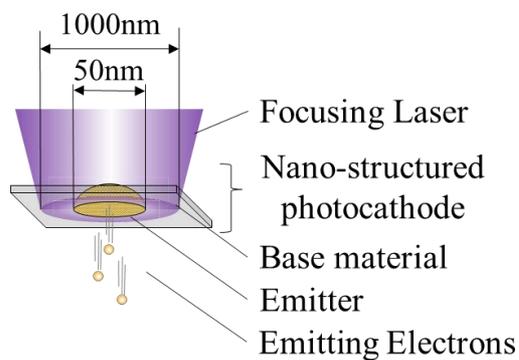


Figure 1: The schematic of nano-structured photoemission.

## 2.2 仕事関数と光子エネルギーの近接

金属陰極に仕事関数以上の光、熱、電界の外力を加えると、この差分のエネルギー  $\Delta E$  程度 広がった電子が放出される。放出電子の空間コヒーレンス性

を高めるためには、仕事関数に可能な限り近接した光子エネルギーを用いて電子放出を行う必要がある。

## 2.3 陰極材の表面粗さ解析

表面粗さによってエミッタンスが増大する理由は、スロープ効果と電界効果であると考えられており、その効果に寄与する表面粗さについて評価する。Figure 2 には段差計で測定した  $SiO_2$  基板表面の粗さを示す。

我々が実験で使用する薄膜陰極の表面粗さの指標として Figure 3 には Pt コーディングした  $SiO_2$  基板の二次電子画像 (SEM: Scanning Electron Microscopy) とそのフーリエ変換を Figure 4 に示す。これらの解析結果から、本研究で使用している基板ではレーザー波長程度の周波数成分が粗さとして多く存在していることが判明した。

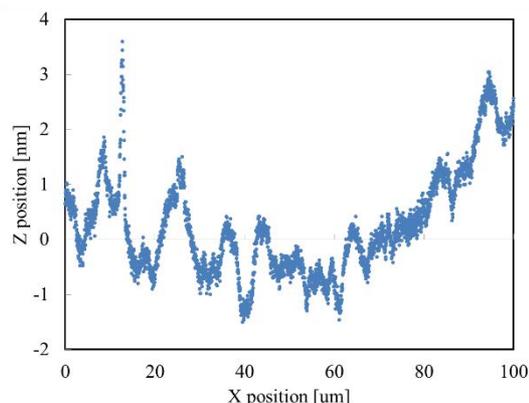


Figure 2: The measurement of  $SiO_2$  surface roughness.

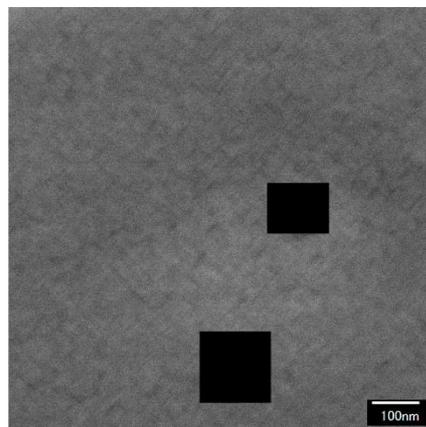


Figure 3: The Scanning Electron Microscopy imaging of Platinum thin film on  $SiO_2$ .

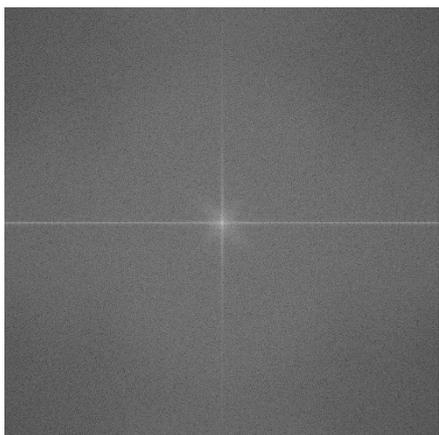


Figure 4: Fourier transform of Figure 2 imaging.

### 3. ナノ構造光陰極型電子源の製作

#### 3.1 エミッタ材質の選定

エミッタ材質に求められる特徴は、(i)量子効率が高く( $\sim 10^{-5}$ )、(ii)熱エミッタンスと粗さエミッタンスが小さいこと、(iii)放出電子のエネルギー分散が小さいことが求められる。我々は、材料を選定するために、Nd:YAG レーザーを紫外線(266nm)に変換し、照射して電子放出特性を評価した。一例として、Nb の電子放出波形を Figure 5 に示す。また、この結果から算出される量子効率を Table 1 に示す。

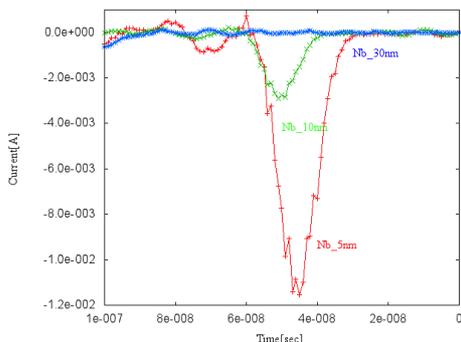


Figure 5: The Current waveform of Nb thin film.

Table 1: Calculated Quantum Efficiency

| Material   | Metal thickness | QE                    |
|------------|-----------------|-----------------------|
| Nb on SiO2 | 5 [nm]          | $4.39 \times 10^{-6}$ |
|            | 10 [nm]         | $9.60 \times 10^{-7}$ |
|            | 30 [nm]         | $2.15 \times 10^{-8}$ |

上記の結果から、量子効率が高く、将来的に、超伝導化することによって放出電子のさらなる単色化が期待される Nb をエミッタ材として採用すること

を決定した。

#### 3.2 ベース材質の選定

金属材料を真空蒸着によって薄膜形成すると、仕事関数が減少することが知られている[4]。このため、我々の薄膜陰極では、紫外線領域でのレーザー照射でも光電子を放出しないベース材料の開発が必要である。この候補として、現在、高仕事関数をもつ Pt ( $\sim 5.5\text{eV}$ ) を候補材料として研究を進めている。

#### 3.3 FIB 装置による陰極の微細加工

放出面積を極限的に小さくするためには、光の回折限界よりも小さい 200 nm 以下の電子源サイズが必要である。ナノメートルスケールの加工を可能にする装置は、FIB (Focused Ion Source) が最も汎用性に優れている。Figure 6 には、SiO<sub>2</sub> 基板の上に Pt を 5nm 蒸着し製作した金属薄膜に Ga ビームの FIB 加工を行った際の二次電子画像 (SEM: Scanning Electron Microscopy) を示す。このとき、加工スポット径は 70nm が限界値であった。

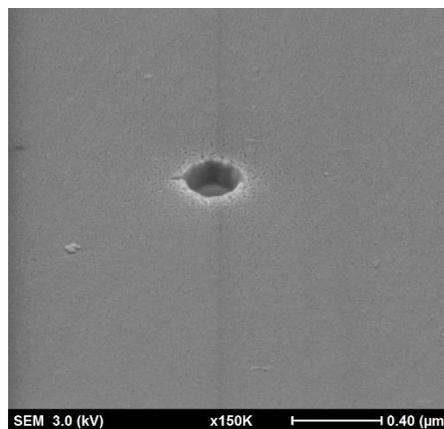


Figure 6: Process Platinum thin film using FIB instruments.

### 4. まとめと今後の展望

本研究では、背面照射型のナノ構造光陰極電子源の製作に取り組んでおり、その一環としてこれらの要素技術の開発を行った。金属材料である場合、薄膜化することでほぼ全ての金属材料がエミッタ材料の候補とすることができ、量子効率と超伝導材料であることを加味して、Nb が最適な材料であると決定した。また、Table 1 から推察されるようにその膜厚は 30nm 以上となると著しく量子効率が低下する。

FIB による微細加工では、Pt と SiO<sub>2</sub> の 2 層基板に加工を行う場合には、その最小加工スポット径は 70nm 程度であった。今後は、蒸着装置によって製作している薄膜金属の結晶性を高めるために、基盤温度制御した薄膜成長法を実地する。その結果とこれまでに決定したパラメータを総合的に融合するこ

とでナノ構造光陰極型電子源の陰極材を製作する。

## 謝辞

本研究の一部は文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業（NIMS 微細加工プラットフォーム）の支援を受けて実施されました。

## 参考文献

- [1] Matthias Germann, Tatiana Latychevskaia, Conrad Escher, and Hans-Werner Fink., “Nondestructive Imaging of Individual Biomolecules”., Phys. Rev. Lett. 104, 095501 (2010).
- [2] Tatiana Latychevskaia, Jean-Nicolas Longchamp, Conrad Escher, Hans-Werner Fink., “Holography and coherent diffraction with low-energy electrons: A route towards structural biology at the single molecule level”., Ultramicroscopy. Online version.
- [3] David H. Dowell, John F. Schmerge., “Quantum efficiency and thermal emittance of metal photocathodes”., Phys. Rev. ST Accel. Beam 12, 074201 (2009).
- [4] Aidelsburger M, Kirchner F O, Krausz F and Baum P 2010 Single-electron pulses for ultrafast diffraction Proc. Natl Acad. Sci. USA 107 19714–9.