Osaka University Knowledge Archive

Title	カソードルミネッセンスとエキソ電子による材料評価に関する基礎研究
Author(s)	粟田, 正吾
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/42097
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

氏　　名	粟田正吾（あわたしょうご）
博士の専攻分野の名称	博　士（工　学）
学位記番号	第　15418　号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用物理学専攻
学位論文名	**カソードルミネッセンスとエキソ電子による材料評価に関する基礎研究**
論文審査委員	（主査） 教　授　志水　隆一 （副査） 教　授　岩崎　裕　　教　授　石井　博昭　　助教授　播磨　弘 助教授　大中幸三郎

論文内容の要旨

本論文では、主として材料開発と放射線線量測定の確立という応用面での研究がされてきたルミネッセンスとエキソ電子について、その信号生成過程が酷似していることに着目し、ルミネッセンスとエキソ電子の相補的な関係をより明確にすることを目指したルミネッセンス・エキソ電子同時計測システムの開発と、その装置を用いた紫外線用センサー材料の開発について述べている。また Photon Counting Imaging System を開発することにより、局所領域の材料評価に威力を発揮しつつあるカソードルミネッセンス・フィールドエミッション走査型電子顕微鏡（Cathodoluminescence-Field Emission Scanning Electron Microscope;CL-FESEM）の機能拡張を実現している。更に合成ダイヤモンド結晶評価へ応用することによりダイヤモンド薄膜内部に存在する結晶欠陥の観察に成功し、結晶のキャラクタリゼーションに有用であることを示している。

第1章では、本研究の背景となるカソードルミネッセンスとエキソ電子の放出過程について述べ、観察の立場から両者の比較を行い、本研究の意義、目的について述べている。

第2章では、エキソ電子の放出原理を説明し、エキソ電子計測の際に要求される装置の構成について述べている。また、エキソ電子放出に伴う発光現象を計測するためにフォトンカウンティングシステムを付設することにより同時計測を可能にしている。更にエキソ電子測定に用いられる加熱機構についても制御プログラムにより高精度直線加熱を実現している。

第3章では、前章で開発した装置を用いた紫外線センサー材料の開発について述べている。線量計材料として知られている CaF_2 にレーザー結晶に用いられるランタノイド系酸化物を添加することにより、紫外線センサーとして最適な添加物を系統的に調べている。その結果、Tb_4O_7 が感度向上に非常に優れた性質を示すことを明らかにし、添加量と試料生成法を確立している。

第4章では、最近局所領域の評価が可能となることで注目されているカソードルミネッセンスに着目し、本研究で既に開発されたカソードルミネッセンス走査型電子顕微鏡の装置の構成及び特徴を述べ、ついで新たに開発した Photon Counting Imaging System について説明を行っている。また CL 像とコントラストの関係について、特性評価の観点より検討を行っている。

第5章では、高純度 IIa 型高圧合成ダイヤモンドで観測される自由励起子発光の温度への依存性について系統的な検討を行い、自由励起子の束縛エネルギー（E_{ex}）の値は～89meV であるとの結論を得ている。更に高空間分解能で

CL観察を可能にするため、集束イオンビーム（FIB）により加工した薄片試料を用いて透過型電子顕微鏡法（TEM）による断面観察像から結晶性の評価及びCLスペクトルの関係を調べている。その結果、高エネルギー電子線照射により結晶欠陥が発生することを見出し、期待された透過電子顕微鏡を用いた高空間分解能観察にとって重大な問題となることを指摘している。

第6章では、第4章で開発したPhoton Counting Imaging Systemを用いて前章で用いたダイヤモンド薄片試料のCLマッピングについて述べている。また、新たに観測されたピークの原因となるものが断面TEM観察時の電子線照射による影響であることを明らかにしている。また、二次電子像からは観測されていない結晶欠陥の存在をCL像で初めて明らかにし、結晶内部の情報を非常によく反映していることから物性評価に有用な手段であることを実証している。

第7章では、本研究で得られた成果を総括し、今後の展望について述べている。

論文審査の結果の要旨

カソードルミネッセンスは、最近局所領域の結晶評価法として注目されている。特に微小領域における結晶欠陥や不純物などの介在により形成された電子準位に対する情報が得られ、また電子線を用いた汎用装置と組み合わせることで複合評価が可能になることから、半導体を中心とした結晶技術の有力な物性評価手段となりつつある。またルミネッセンスの発光過程と酷似した信号生成過程を経るエキソ電子は、材料開発や放射線量計測技術に応用されてきたが、表面近傍の情報が得られることから、最近表面物性分野で注目されている。しかしその信号生成機構については種々のモデルが提唱されているが、未だ解明されていないのが現状である。

本研究は、ルミネッセンスとエキソ電子の材料評価への応用とエキソ電子放出機構の解明を目指し、ルミネッセンス・エキソ電子同時計測装置及び新しい紫外線センサー材料の開発を行ったものである。更により局所領域の材料評価の実現を目指し、電界放出型電子銃を搭載したCL－FESEMの機能拡張のために、新たにPhoton Counting Imaging Systemの開発を行い、合成ダイヤモンドの結晶評価へ応用したもので、その主な研究成果を要約すると以下の通りである。

(1) 提案したルミネッセンス・エキソ電子同時計測装置を実現するため、エキソ電子放出に伴う発光現象をフォトンカウンティングにより計測するシステムを付設し同時計測を可能にすると共に、加熱機構をパソコンにより制御することで高精度直線加熱を実現している。

(2) 試作装置を用いて紫外線センサー材料の開発への応用を行い、線量計材料として知られているCaF_2に、レーザー結晶に用いられるランタノイド系酸化物を添加して、紫外線センサーとして最適な添加物を系統的に調べ、Tb_4O_7が感度向上に非常に優れた性質を示すことを明らかにし、添加量と試料生成法を確立している。

(3) 高純度IIa型高圧合成ダイヤモンドで観測される自由励起子発光の温度への依存性について系統的な検討を行い、自由励起子の束縛エネルギー（E_{ex}）の値は～89meVであるとの結論を得ている。更に、FIBにより加工した薄片試料を用いて断面TEM観察像による結晶性の評価及びCLスペクトルの関係を調べ、高エネルギー電子線照射により結晶欠陥が発生することを見出し、期待された透過電子顕微鏡を用いた高空間分解能観察にとって重大な問題となることを指摘している。

(4) 試作したPhoton Counting Imaging Systemを用いてダイヤモンド薄片試料のマッピングを行い、新たに観測されたピークの原因となるものが断面TEM観察時の電子線照射による影響であることを明らかにし、二次電子像からは観測されていない結晶欠陥の存在をCL像で初めて観察することに成功し、物性評価に有用な手段であることを実証している。

以上のように、本論文ではルミネッセンス・エキソ電子同時計測装置及び電界放出型電子銃を用いたカソードルミネッセンス走査型電子顕微鏡に対するPhoton Counting Imaging Systemを開発し、フッ化カルシウム、人工合成ダイヤモンド等を用いた検証実験によりその材料開発および材料評価装置としての有用性を実証しており、その成果は応用物理学、特に放射線物性及び結晶工学の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。