

透過型電子顕微鏡による薄膜の断面観察

-観察試料の作製から観察まで-

技術部 機器分析技術室

水野 善幸



図・1 TEMの外観

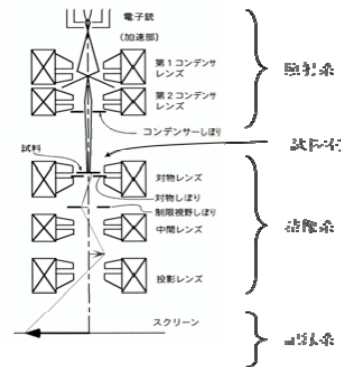
1. 背景

昨年3月に透過型電子顕微鏡 (TEM : Transmission Electron Microscope) が日本電子社製の JEM-2100F へ更新された。外観写真を図・1 に示す。本装置はエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置、反射電子検出器、走査透過像検出器 (Scanning-TEM)、CCD カメラ等が搭載され、ナノスケールレベルの観察や構造解析の機能が拡充したと言える。また、今回の更新に伴い、イオンポリシング、ディンプルグラインダ、集束イオンビーム加工観察装置 (FIB) などの TEM 観察試料の作製装置も導入され、観察試料作製のおける利便性も良くなった。

本稿では、新規導入されたイオンポリシング、ディンプルグラインダによる薄膜材料の断面観察用試料の作製工程と TEM 観察および STEM-EDS 分析の結果について報告する。

2. 透過型電子顕微鏡の構造と原理

図・2 に TEM の概略図を示す。電子銃から発生し加速管によって加速された電子は、照射系によって細く絞られ、試料表面に到達する。観察試料の非常に薄い部分では電子線が透過 (素通り) または一部の電子線は散乱 (散乱電子) する。透過電子や散乱電子は結像系によって取捨選択され蛍光スクリーン上に結像される。通常の TEM 観察のコントラストは透過電子と弾性散乱電子の遮断 (回折コントラスト、散乱コントラスト) またはそれらの干渉波 (位相コントラスト) によるものである。



図・2 TEM の概略

3. 観察試料について

TEM 観察に使用した試料は、到達真空度が 10^{-8} Pa 台に達する UHV へリコンスパッタ装置によって、シリコン単結晶基板に成膜されたモリブデン単層膜である。



図・3 薄膜の写真

(実線は元の大きさ、点線は成膜部分)

4. 観察試料の作製

観察試料はφ3mm、厚さを数nm程度（観察可能な厚さ）にする必要がある。観察試料は機械研磨によって厚さ100μm程度にした後、ディンプルグラインダで凹みをつけ、イオンミリングで観察試料の中心に孔を開けた。孔の周辺は非常に薄くなっているため、観察が可能となる。作製のフローを図・5、使用した機器を以下に挙げる。

○回転研磨機

マルトー製

○精密平面研磨機

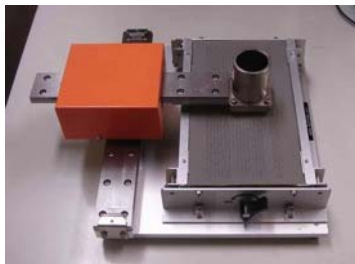
ハンディラップ HLA-2 日本電子製

○ディンプルグラインダ

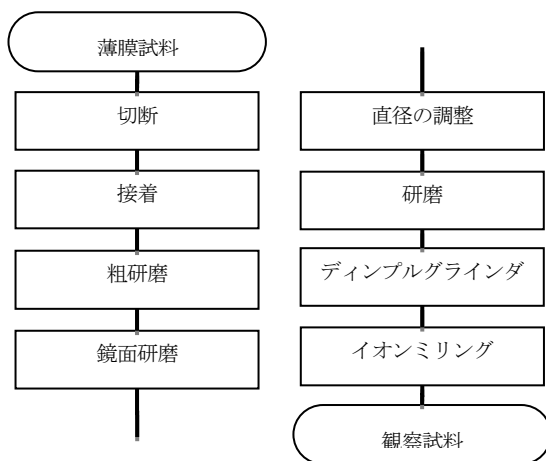
Model 656 GATAN 社製

○精密イオンポリッシングシステム

PIPS Model691 GATAN 社製



図・4 ハンディラップ



図・5 観察試料作製のフロー図

4.1. 試料の切断・接着

試料の切断は、裏面にダイヤモンドガラスカッターでケガキを入れシリコンの劈開性を利用し約2mm×4mmの大きさに破断した。

破断した試料は熱硬化型エポキシ樹脂 (G2 epoxy: GATAN社製) で成膜面同士を接着し、圧着治具で約3kg/cm²で加圧しながら樹脂を熱硬化させた。熱硬化の条件は100℃に保持した乾燥機中で約40分間加熱とした。なお今回の試料の基板の厚さは0.5mmと薄いためダミーとして、基板と同じ材質のシリコンを同時に接着した。

4.2. 研磨工程

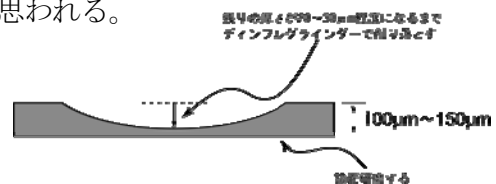
ガラス板上に試料の破断面を上下方向に試料固定用ワックス (サンワックス) で固定し、ハンディラップで#800、#1000、#3000の耐水研磨紙で順次、乾式研磨し平滑な面とした。その後回転研磨機でアルミナ研磨剤を用いてバフ研磨し鏡面に仕上げた。

次に観察試料をφ3mmのアルミ製のロッドの断面にワックスで固定し、ロッドからはみ出た部分を耐水研磨紙#800で研磨しφ3mmとした。

φ3mmとした観察試料は、ロッドから外し、鏡面研磨した面を下に再度、ワックスでガラス板に固定した。厚みが100μm前後に達するまで耐水研磨紙#800、#1000、#3000を順次用いてハンディラップで研磨した。厚みはマイクロメーターで逐次、計測した。

4.3. ディンプルグラインダ

ハンディラップで厚みを約100μmをした観察試料はガラス板に固定したままディンプルグラインダに取り付け、アルミナ研磨剤を使用して約60μmの深さの凹みをつけた。この時点で一番薄い部分の残り厚さは約40μmと思われる。



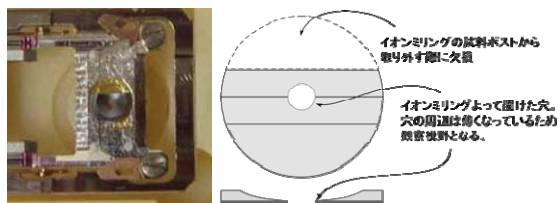
図・6 ディンプルグラインダ処理後の断面図

4.4. イオンミリング

ディンプルグラインダの後、精密イオンポリッシングシステムでArイオンによるイオンミリングを行った。ミリングの条件は試料回転数 3rpm、加速電圧 5kV~2kV、イオン銃角度を 8° ~2° で行った。

加速電圧 5kV、イオン銃角度 8° で観察試料にわずかな穴けた後、3kV、4° に変えて穴が 1.5~2 倍程度に広がるまで行った。最後に表面に付着した削りカスの除去を目的に 2kV、2° で照射して仕上げた。

作製した観察試料とその概略図を図・7に示す。

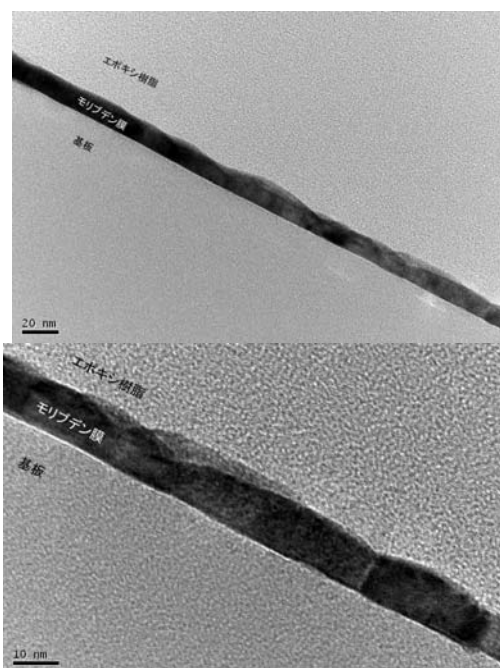


5. 観察操作

作製した観察試料について、TEM 観察及び STEM による明視野像と暗視野像観察、STEM-EDS 分析を行った。

5.1. TEM 観察

図・8に薄膜試料全体の観察像を示す。エポキシ樹脂を境に、張り合わせた薄膜試料が確認できる。また本試料は製膜時に熱処理を施しているため基板であるシリコンの酸化膜と思われる約 1 μ m の層が確認できる。図・9はモリブデン膜の一部を拡大した観察像である。約 10nm の単層膜を確認することが出来た。

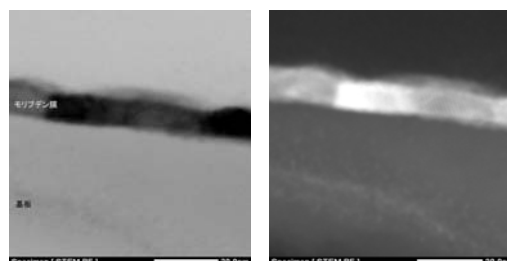


5.2. STEM-EDS

図・10に STEM による明視野像と暗視野像の図を示す。

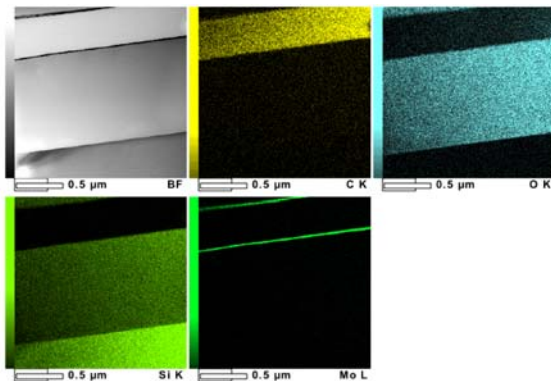
暗視野像は原子番号に依存したコントラストとなるため、原子番号の大きいモリブデンの層が明るく観察されている。

図・11はSTEM-EDS分析によるマッピングの結果である。シリコンの酸化膜と思われる層からSiとOが検出されていることから SiO₂であることが確認された。また約 10nm のモリブデン膜が明確に判別されていることから、空間分解能が数 μ m と言われる SEM-EDSに比べ、STEM-EDSの空間分解能がnmレベルであることがわかる。



- 1)日本表面科学会 編 透過型電子顕微鏡 2009 丸善株式会社
- 2)近野豊彦 著 物質からの回折と結像 2003 共立出版
- 3)田中信夫 著 電子線ナノイメージング 2009 内田老鶴圃

図・10 明視野像（左）と暗視野像（右）



図・10 STEM-EDS によるマッピング

6. まとめ

薄膜試料の断面 TEM 観察用の試料を作製し、実際に観察することが出来た。しかし観察試料完成の成功率が 20% と非常に悪く、さらに練習をする必要を感じた。特に失敗する行程は $\phi 3\text{mm}$ にする行程であった。またディンプルグラインダで穴を開けてしまうなど厚みの見積を間違えることである。このことから精確な厚みの見積をするなど、試料作製にも工夫が必要であることも実感できた。

7. 謝辞

本稿にて使用したモリブデン単層膜の薄膜試料は加藤・安達・小池研修室より提供して頂きました。ここに感謝の意を表します

8. 参考文献