

隣接 2 粒子接点における FIB 法 TEM 試料作製

○庄司 大^{a)}

^{a)}東京科学大学 リサーチインフラ・マネジメント機構 コアファシリティセンター 分析部門

1. はじめに

透過電子顕微鏡 (TEM: Transmission Electron Microscope) は、電子銃から照射され試料を透過した電子線を磁界レンズで結像し、高倍率の拡大像を得る分析装置である。TEM 観察においては、電子線が透過できるようにバルク試料を 100 nm 以下の厚みに薄片化する前処理が必要となる。この薄片加工技術の一つとして、集束イオンビーム (FIB: Focused Ion Beam) 法がある。FIB 法は、集束した Ga イオンビームの照射によりナノオーダーの微細加工を行う技術であり、加工断面が極めて平滑かつ低ダメージであることから、特定領域の TEM 試料作製に不可欠となっている。筆者は受託分析業務において、TEM の試料作製および観察・測定を行っている。今回、隣接する 2 つの微粒子の接点の TEM 測定を受任したが、試料形状の特殊性により適切な TEM 試料を作製できなかった。本報告では、この作製不良の原因究明と対策を行い、微小な粒子接点を確実にとらえる新たな試料作製プロセスを提案する。

2. 隣接 2 粒子接点における FIB 法 TEM 試料作製の問題点

本分析の目的は、加熱条件の異なる粒径数 μm のアルミナ微小粒子同士の接点における界面構造の違いを、TEM 観察により明らかにすることである。接点部の結合サイズは数 nm から十数 nm と極めて微小であり、特定位置の微小領域を狙う必要があるため FIB 法を採用した。しかし、従来の加工法では以下の 3 つの問題が生じた。

問題①：カーテン効果による接点の切断

カーテン効果とは、FIB 加工断面において、表面の急峻な凹凸に起因する削れやすさの違いから、ビーム入射方向と平行に筋状の凹凸が生じる現象である (図 1)。今回の試料では接点上部が急峻な凹形状であったため (図 2 (a))、カーテン効果の影響によりその下部が過剰に切削され、重要な接点部が切断される問題が発生した (図 2 (a'))。

問題②：切削屑の再付着による試料構造の誤認

接点下部の空隙に FIB 加工時の切削屑が堆積・付着し、本来の接点構造との判別が困難になる問題が生じた (図 2 (b))。この空隙は粒子の陰になるため通常の加工保護膜の成膜方法では埋めることができなかった。

問題③：加工位置精度不足による接点位置外し

TEM 試料は 100 nm 以下の厚みに仕上げる必要があり、この極薄の領域内に数 nm オーダーの接点部を収めなければならない。しかし、使用する FIB 装置の加工位置精度では接点を正確に狙うことが難しく、高い確率で接点位置を外すリスクがあった。

3. 問題への対策

問題①および②への対策：希釈樹脂スピンコート法の導入



図 1. カーテン効果

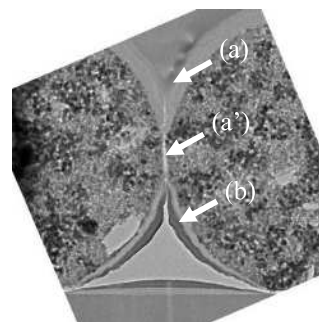


図 2. 問題①、②の影響を受けた TEM 試料

カーテン効果（問題①）の抑制には、真空蒸着法やスパッタ法などの成膜技術を用いて急峻な凹部を埋めてなだらかにすることが有効である。しかし、本試料の急峻凹形状を解消するには $1\mu\text{m}$ 程度の厚い膜が必要であり、これらの成膜法では困難であった。そこで、樹脂コーティングを検討した。ただし、厚い樹脂で粒子全体を埋めてしまうと、粒子の位置や境界が視認できなくなり、目的の接点を狙った加工が困難になる。粒径が数 μm であることを考慮し、樹脂層は $1\mu\text{m}$ 以下の極薄に制御する必要がある。そこで、エポキシ樹脂を希釈液で 10 wt% に希釈し、スピコート法により塗布した（図 3）。塗布後の状態を観察した結果、樹脂膜は粒子の視認性を妨げないほど十分に薄く、2 粒子の中心を結ぶ線分上から接点位置を正確に同定できることが確認された。また、この樹脂被覆により接点上部の急峻な凹形状がなだらかに緩和され、カーテン効果の抑制が期待できる。さらに、樹脂は接点下部の空隙にも浸透するため、切削屑の侵入を防ぎ、堆積物による誤認（問題②）も同時に解決できる。

問題③への対策：高精度マーキングラインの形成

加工位置精度不足（問題③）に対し、粒子形状および接点位置を明確に確認できる段階で、接点を通る直線状に極細のマーキングラインを FIB により形成した（図 4）。このラインを加工の目印とすることで、薄片化の際の位置ズレを最小限に抑えるプロセスを構築した。

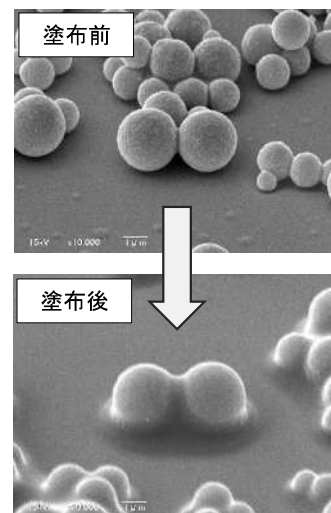


図 3. エポキシ樹脂塗布

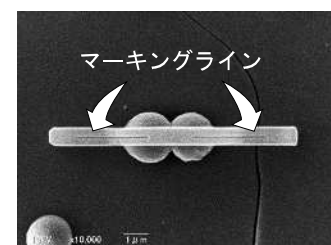


図 4. マーキングライン

4. 結果と考察

提案した対策を適用し、FIB による TEM 試料作製を行った。作製した薄片試料の TEM 観察結果を図 5 に示す。接点上部の急峻な凹形状はエポキシ樹脂の充填によりなだらかに緩和され（図 5(a)）、カーテン効果の発生を防止し接点を正常な状態で残すことができた（図 5(a')）。また、接点下部の空隙も樹脂で埋められていたため、FIB 加工に伴う切削屑の堆積は見られなかった（図 5(b)）。

さらに、目標の接点が観察できたため、接点の位置外しは生じなかった。なお、試料作製で線幅 100 nm のマーキングラインを試料内に収められたことから、本手法における加工位置精度は $\pm 100\text{ nm}$ 以下を達成している。

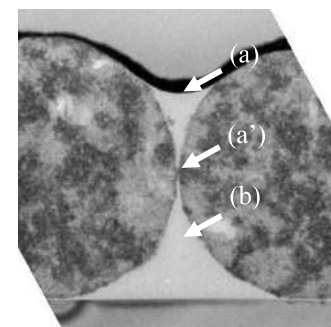


図 5. 対策を施して作製した TEM 試料

5. まとめ

隣接する 2 つの微粒子の接点を狙った FIB 法 TEM 試料作製において、従来法で課題となった 3 つの問題に対し、希釈エポキシ樹脂のスピコート塗布とマーキングライン形成を組み合わせた新たな作製スキームを構築して適切な試料作製を行い、目的とする接点の TEM 観察を行うことができた。

謝辞

本研究にあたり、旧東京工業大学の花村克悟教授（当時）より研究データをご提供いただきました。厚く御礼申し上げます。