

# 透過型電子顕微鏡用の電圧印加サンプル作成方法の検討

名古屋大学 全学技術センター 工学系技術支援室 分析・物質技術系

○樋口 公孝

k.higuchi@esi.nagoya-u.ac.jp

## 1. はじめに

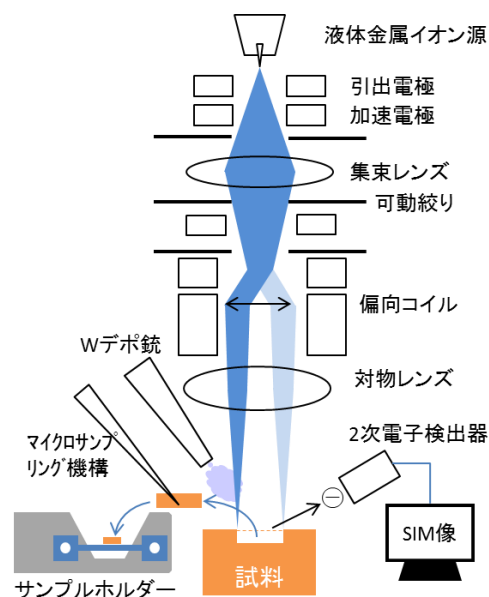
名古屋大学全学技術センター工学系技術支援室分析・物質技術系では、名古屋大学工学部・工学研究科を中心に多くの分析依頼を受け付けており、その中で電子顕微鏡による依頼対応が筆者の主な業務内容である。電子顕微鏡は分析対象サンプルの極微細な箇所に対して様々な観察・分析が可能であるため、特にナノテクノロジー・ナノサイエンスの分野において需要が高いが、実験内容によっては観察前のサンプル加工時に多くのノウハウを必要とする場面もある。本報告では、電池材料や半導体デバイスの充電・放電時の微細構造の変化を評価するために、透過型電子顕微鏡内でサンプルに電圧を印加しながら観察・分析を実施できるサンプルの作成方法の検討について紹介する。

## 2. 透過型電子顕微鏡(TEM)

透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope ; TEM)はサンプルに電子線を照射し、サンプル内を透過した電子を用いて拡大像を得る装置である。TEM では電子がサンプルを透過する必要があるため、サンプルの厚みをできるだけ薄くすることが求められる(100 nm 程度)。そのため、実験目的に応じ様々なサンプル薄片化装置を用いて加工を行うのが一般的である。

## 3. 集束イオンビーム加工装置(FIB) (右図参照)

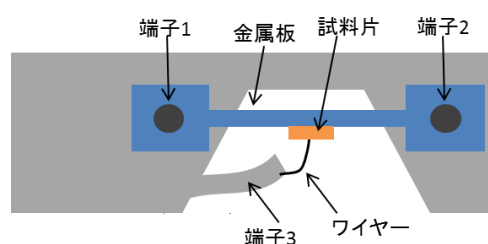
集束イオンビーム加工装置(Focused Ion Beam System ; FIB)は TEM 用のサンプル薄片化加工装置の一つである。電圧を印加し加速・集束したガリウムイオンビームを用いて試料の掘削や 100 nm 程度までの薄片化を行えるほか、発生した二次電子を検出することで画像(Scanning Ion Microscope Image; SIM 像)を取得することもできる。また、 $W(CO)_6$  ガスを吹き付けながら照射することで、W 膜を照射位置に堆積させ接着剤のように用いることができ(W デポ機能)、マイクロサンプリング機構と併用することでサンプルの特定位置からの切り出しからホルダーへの接着、TEM 用の薄片化までの操作が一台で実施可能である。本検討では日立ハイテクノロジー製の FB2100 を用いた。



集束イオンビーム(FIB)装置概略図

## 4. 電圧印加用ホルダー(右図参照)

TEM 内でサンプルに電圧を印加し充放電による変化をリアルタイムで観察するために本検討では専用のサンプルホルダーを用いた。本ホルダーは端子 1,2 間に土台となる薄い板状の金属を固定し、その上にサンプルを FIB により取り付け、端子 3 から伸ばしたワイヤーをサンプル上部に接続する構造となっている。端子 3 と 1,2 間に電圧をかけることで試料への電圧印加、端子 1,2 間に電流を流すことで金属板の加熱が可能である。本ホルダーは透過型電子顕微鏡 HF2000、および上述の FB2100 の双方に挿入可能である。



電圧印加用試料ホルダー概略図

## 5. サンプル加工手順(下図参照)

### ①ホルダー側の準備

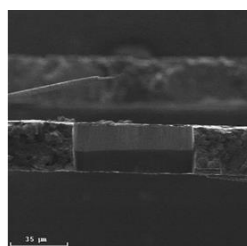
土台の Cu 板をホルダーに固定したのち、径 10  $\mu\text{m}$  の金ワイヤーを端子 3 に銀ペーストで取り付けた。次に光学顕微鏡下でピンセットを用いてワイヤーを曲げ、奥行き方向に迂回させる経路で Cu 板の中央部に可能な限り接近させた。その後 FIB に挿入し、Cu 板のサンプル貼付予定位置を平滑に加工した。さらに金ワイヤー先端を 2  $\mu\text{m}$  程度まで細くするとともに、ワイヤーが曲がりやすいよう、2  $\mu\text{m}$  角の切れ込みを複数箇所加工した。

### ②サンプルピックアップと金ワイヤー貼付

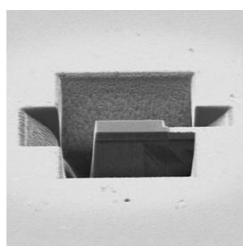
本検討では基板金属(下部電極)-半導体-金属(上部電極)の構成から成る積層サンプルを用いた。FIB 中で縦 10  $\mu\text{m}$ ×横 30  $\mu\text{m}$ ×高さ 10~15  $\mu\text{m}$  (傾斜がかかっている)にサンプルを切り出し、Cu 板に W デボ機能で貼り付けた。低出力ビームでサンプル周辺を削り、サンプル表面の電氣的な導通パスを除去した(クリーニング)。導通の有無はマイクロサンプリング機構の機能を用いて確認した。その後、金ワイヤーをサンプル上部の TEM 観察および最終クリーニング時に障害とならない位置に W デボ機能で貼り付けた。

### ③観察部位の薄片化

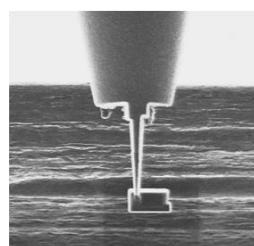
サンプルの前面と後面を交互にビーム出力を徐々に弱めながら削り薄くした。なお、サンプル後面を削る際にはスキャン方向に 2° ローテーションをかけることでサンプルが楔形になるよう加工した。一般的な FIB サンプルの薄片化ではサンプル中心部を平行に階段状に薄くするが、上部電極の欠落防止のためと形をシンプルにしてクリーニングを容易にするために本検討では楔形を採用した。楔の先端を 100 nm 程度まで薄くし、弱いビームで表面をクリーニングした。テスターで電極間の導通を調べサンプル作成が成功したことを確認した。



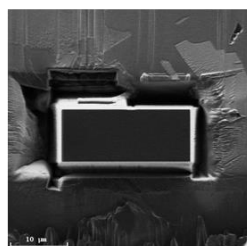
Cu板加工



サンプル片切り出し



サンプル片ピックアップ



4辺クリーニング



金ワイヤー取付



薄片化

## 6. 本検討のアウトプットと今後の課題

本検討で得られたノウハウをマニュアルにまとめた。FIB 装置の経験者であれば本マニュアルを用いながら一度講習を受けることで、効率良く上述のサンプル作成のスキルが得られる体制を整えた。

今後の課題としては、FIB 加工後で TEM 内に挿入するまでの保管や移動時のわずかな振動による金ワイヤーのサンプルからの脱落防止や、楔形では先端部以外はサンプルが厚く電子線が透過しにくいいため、楔形以外でのサンプル形状の検討が挙げられる。

## 7. 謝辞

本検討を実施するに当たり、名古屋大学未来材料・システム研究所の丹司敬義特任教授、石田高史助教には大変お世話になりました。心より御礼申し上げます。