

Professional Report

ナノテクの世界をひらく 超高分解能走査電子顕微鏡技術

Technologies of Ultra-high Resolution Scanning Electron Microscopes for Creating the Nano-tech World

佐藤 貢 Mitsugu Sato

佐藤 貢
1982年日立製作所入社
株式会社日立ハイテクノロジーズ
研究開発本部 所属
現在、走査電子顕微鏡の研究開発に従事
日本顕微鏡学会会員
工学博士



走査電子顕微鏡(SEM)の分解能は0.4 nmの領域に入り、加速電圧の面でも100 Vまでの極低加速領域で高分解能観察ができるようになった。こうしたSEMの高性能化の背景には、曲率100 nmの陰極先端からトンネル効果で電子を引き出す電界放出形と呼ばれる高輝度電子源技術がある。電界放出形電子源を安定に動作させるには、 10^{-8} Paの超高真空を作り出す真空技術が必要となる。

日立は、他社に先駆けて電界放出形電子源の実用化に成功し、以来、超高分解能SEMの事業分野でトップシェア製品を生み出してきた。高輝度電子源技術の確立により、SEMは単なる形態観察のツールから半導体計測分野へと用途を拡大し、大きなビジネスに成長した。

一方、高輝度電子源の開発後、対物レンズの高性能化、信号検出系の高感度化・高機能化と、技術革新を続けてサブナノメートルの領域でSEMが使えるようになった。さらに、ダメージレスという方向では、試料に負の電圧を印加して電子線を試料直前で減速するリターディング法の実用化により、100Vの極低加速でも高分解能観察ができるようになった。

こうした超高分解能走査電子顕微鏡技術は、半導体分野はもとより、触媒やナノチューブの研究など、ナノテクの世界をひらく強力なツールとして定着している。今後は、多極子による収差補正技術や画像処理技術など、高性能化の新たなブレークスルーが期待される。

1 はじめに

走査電子顕微鏡(SEM : Scanning Electron Microscope)は、陰極線オシログラフの研究の中で1935年にベルリン工科大学のM.Knollによって考案され¹⁾、ケンブリッジ大学のC.W.Oatley教授のグループによって初期のSEMが開発された²⁾。SEMの商用機は、1965年に英国のCambridge Instrument社から最初に発売され、その後、日本でも製品化が始まった。そして、今日までに目覚ましい進歩を遂げた。また、その用途も単なる形態観察から半導体デバイスの寸法計測や欠陥検査・解析に広がり、SEMはバイオ分野や材料分野の研究開発のみならず、急速に微細化が進む半導体分野にも深く浸透していった。SEMの高性能化が進むと、さらに高度なアプリケーションが可能に

なり、例えば、次世代エネルギーとして期待が高まる燃料電池やカーボンナノチューブに代表されるナノ材料の研究など、ナノテクの世界をひらく重要な役割を担うようになった。

SEMは、電子源から発生した一次電子線を試料上に細く絞って走査し、試料から発生する信号電子を検出して試料の拡大像を得る装置である(図1参照)。

したがって、その性能を左右する基本要素は、電子線を発生する電子源、電子線を試料上に細く絞る対物レンズ(電子光学系)、そして試料から発生する信号電子を検出する信号検出系である。SEMの基本要素が開発された後、電子源の高輝度化、電子光学系の高分解能化、信号検出系の高感度化・多機能化の順に技術革新が進んだ。また、この間、SEMの電子光学系だけでなく、制御系に

関しても飛躍的な進歩を遂げている。高輝度電子源を搭載した初期の超高分解能SEM（HFS-2形，1972年発売）と最新機種（S-4800形，S-5500形）の外観を図2に示す。本体（電子光学系），制御系ともに，この35年間で大きく変化したことがわかる。HFS-2形からスタートした日立の超高分解能SEMは，半導体分野向けも含め，累積で7,000台以上を納入している。今後の技術動向としては，多極子による収差補正技術が，電子レンズの性能限界を超えるブレークスルーとして期待されている。

ここでは，こうしたSEMの高性能化を支える技術について述べる。

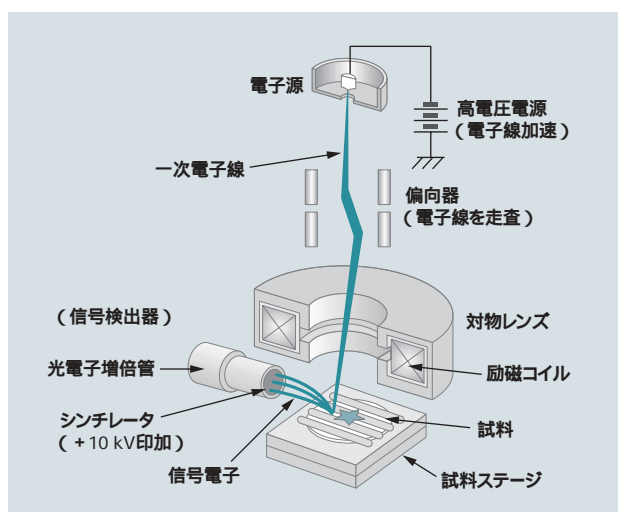


図1 走査電子顕微鏡 (SEM) の構成
走査電子顕微鏡の構成の概略を示す。

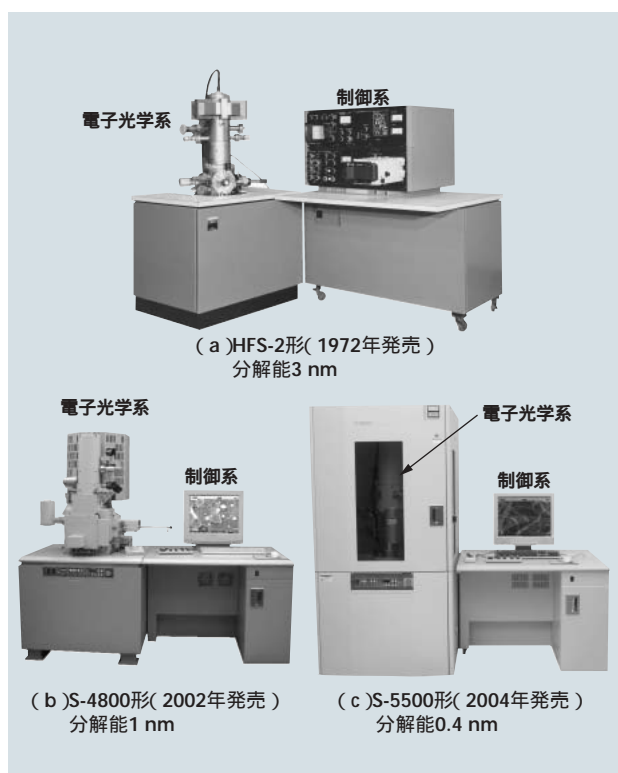


図2 超高分解能SEMの外観
高輝度電子源を搭載した初期モデル(a)と最新モデル(b)(c)を示す。

2 超高分解能を実現した電界放出形電子源

現在のSEMに用いられている代表的な電子源（タングステンフィラメント形，電界放出形）を図3に示す。SEMが製品化された当初は，図3(a)に示すタングステンフィラメントの陰極が用いられた。この電子源では，2,000 K程度に通電加熱したフィラメントから熱エネルギーで放出する電子を一次電子線として用いる。このような電子は，エネルギーのばらつきが約2 eVであり，輝度も 10^6 A/cm²/srが限界である。このため，当時は数十nmの分解能が限界であった^{3),4)}。

1960年代後半，シカゴ大学のA.V.Creweらによってタングステンフィラメントの約1,000倍の輝度を有する電界放出形電子源〔FE：Field Emission，図3(b)参照〕が開発され⁵⁾，SEMの分解能が数nm（加速電圧30 kV）へと飛躍的に向上した⁶⁾。タングステンフィラメントの熱電子形電子源と電界放出形電子源（FE電子源）のSEMで得られる像の比較を図4に示す。

日立ではA.V.Crewe博士の指導を受けて，いち早くFE電子源の実用化に取り組み，1972年に最初の電界放出形走査電子顕微鏡〔HFS-2形FE-SEM，図2(a)参照〕を市場に投入した。FE電子源では，先端曲率を約100 nmに化

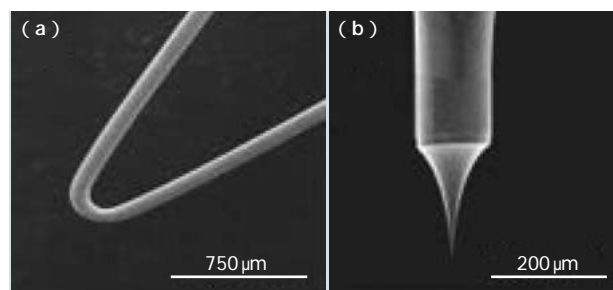


図3 熱電子形陰極と電界放出 FE 形陰極
タングステンフィラメントタイプの熱電子形陰極(a)と，電界放出形の陰極(先端の曲率半径は約100 nm) (b)を示す。

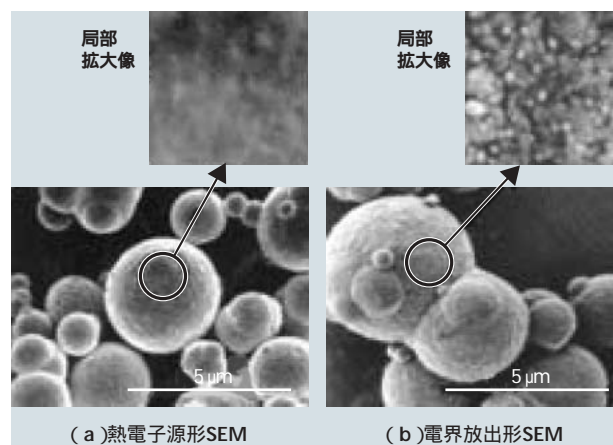


図4 熱電子形電子源と電界放出形電子源のSEM像の違い
タングステンフィラメントの熱電子形電子源を搭載したSEMの画像(a)と，電界放出形電子源を搭載したSEMの画像(b)を示す。

学研磨したタングステン単結晶を陰極として、室温で動作させる。この陰極に3~6 kVの電圧を印加すると陰極先端に強電界が形成され、陰極からトンネル効果で電子が飛び出す。この電子源は、高輝度だけでなく、エネルギーのばらつきが約0.2 eVと非常に小さく、超高分解能に適している。しかし、この理想的な電子源を安定に動作させるには、 10^{-8} Paの超高真空が必要である。一般に、金属に電子が衝突するとその表面からガス分子が放出するため、電子ビームを出した状態で 10^{-8} Paを保持することが大きな課題であった。そのため、FE電子源開発における最初の10年間は主にFE電子源を安定動作させる真空技術の確立に注力された。そして、大量の電子が衝突する陽極を電子銃内の超高真空下で直接加熱するインナーベーク技術と表面処理ノウハウの蓄積により、FE電子源の安定動作を実現した。

一方、半導体分野においては、パターンの微細化が進み、1980年代初頭に光学顕微鏡によるパターン検査が行き詰まってきた。このとき、光学顕微鏡に替わる検査技術としてFE技術が注目された。FE電子源の実用化で、低加速電圧で高分解能なSEMが実現され、デバイスにダメージを与えない低加速電子ビームでパターン検査が可能になった。この目的で開発した測長SEMは日立のトップシェアビジネスに成長した。

3 対物レンズの高分解能化

FE電子源の実用化によりSEMの分解能が大幅に向上し、これまで見えなかったものが見えるようになると、アプリケーションが拡大してさらなる高分解能化の要求が出てきた。こうした市場ニーズに応えるため、次の手段として対物レンズの高分解能化（低収差化）が進められた。一般に、対物レンズを短焦点で動作させると収差が小さくなって分解能が向上する。そこで、短焦点動作に適した対物レンズの開発が進められた。

現在のSEMに用いられている各種対物レンズの断面形状

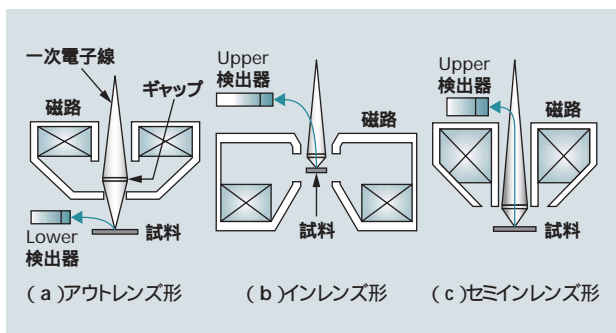


図5 各種対物レンズの断面形状
現在のSEMに用いられている各種対物レンズの断面形状を示す。

状を図5に示す。SEMが開発された初期の対物レンズは、図5 (a) に示すアウトレンズ形と呼ばれる形状であり、試料からの信号電子は対物レンズ下方の検出器（Lower検出器）で検出される。一次電子線は、レンズ磁路のギャップ部から漏洩（えい）する磁界で集束されるため、レンズ磁界領域と試料との距離で焦点距離が決まる。アウトレンズ形の場合、図5 (a) からわかるように磁路のギャップ部が試料から離れており、短焦点動作が困難である。そこで、対物レンズを短焦点で動作させるために、図5 (b) に示すインレンズ形が開発された⁷⁾。インレンズ形では、数mm角の小形試料をレンズ磁界中（磁路のギャップ部）に配置し、試料から発生する信号電子を対物レンズ上方に配置した検出器（Upper検出器）で検出する。インレンズ形FE-SEMの実現により加速電圧30 kVの分解能が2 nmから0.7 nmに向上し、最新のインレンズ形

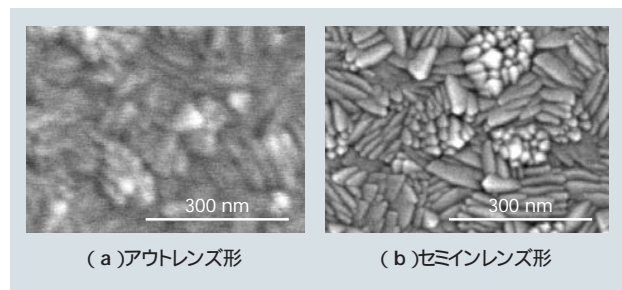


図6 アウトレンズ形とセミインレンズ形の分解能の比較
試料はTO膜,加速電圧は2kVである。

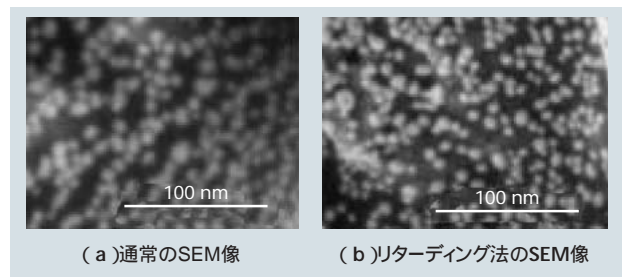


図7 セミインレンズ方式の通常のSEM像とリターディング法で取得したSEM像の比較
照射電圧は500Vである。

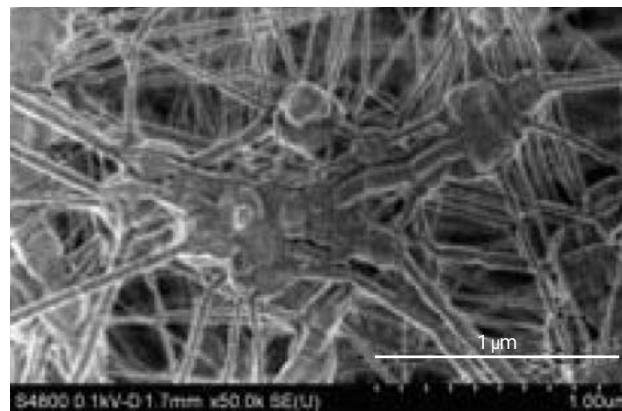


図8 照射電圧100Vの極低加速観察例
試料はメンブレンフィルタ,装置はS-4800形/リターディングモードである。

FE-SEM(S-5500形)では0.4nmの分解能を実現している。

一方、デバイスの微細化が進むにつれて、開発当初15nmであった測長SEMの分解能では不足になってきた。高分解能化が可能なインレンズ形はウェーハサイズへの対応が困難なため、大形試料に対する高分解能化の手段として、図5(c)に示すセミインレンズ形が開発された⁸⁾。セミインレンズ形では、磁路のギャップをレンズ下方(試料側)に配置してレンズ磁界を試料側に形成する。このとき一次電子線の集束作用が対物レンズの下方で発生するため、ウェーハサイズの大形試料に対しても短焦点動作が実現できる。この方式により、測長SEMの分解能が15nmから8nmに向上した。アウトレンズ形とセミインレンズ形のFE-SEMで取得した像の違い(加速電圧2kV、試料:ITO膜)を図6に示す。

対物レンズの短焦点化に加え、さらなる高分解能化の手段としてリターディング法(減速法)が実用化された。リターディング法は、試料に負の電圧を印加して一次電子線を試料直前で減速する方法である。例えば、一次電子線を電子銃で2kVに加速し、試料に-1.5kVを印加すれば、試料に照射される一次電子線は500Vに減速される。この方法で試料照射電圧1kVの分解能が2nmから1.4nmに向上した⁹⁾。セミインレンズ形(S-4800形)で取得した加速電圧500VのSEM像と、同照射電圧でリターディング法(試料印加電圧:-1.5kV)を適用したSEM像の比較を図7に示す。試料は分解能評価用の金粒子である。リターディング法の大きな利点は、100V程度の極低加速領域での高分解能アプリケーションが可能になることである。ビームダメージに非常に敏感なメンブレンフィルタを照射電圧100Vで観察した例を図8に示す。100Vの照射電圧では、メンブレンフィルタがダメージなく観察できている。

各種対物レンズ方式の分解能と加速電圧の関係を図9に示す。セミインレンズ形は特に低加速電圧の高分解能観察、インレンズ形は高加速電圧の高分解能観察に最も適していると言える。

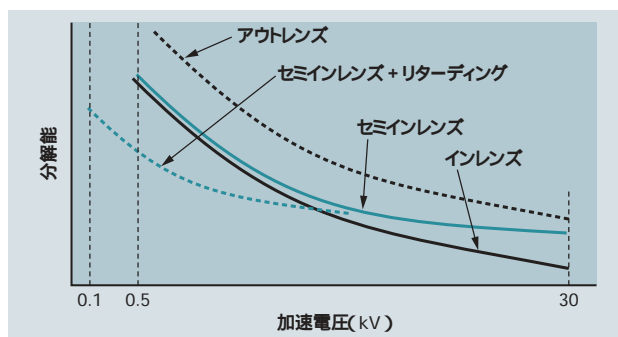


図9 各種対物レンズ方式の分解能と加速電圧の関係
各種対物レンズ方式の分解能と加速電圧の関係を示す。

4 信号検出系の高性能化

4.1 一次電子線を偏向しない信号検出技術

SEMの信号検出器は、図1に示したようにシンチレータと光電子増倍管で構成され、シンチレータの表面には信号電子を加速して衝突させるために+10kVの高電圧が印加される。一方、対物レンズ短焦点化のために検出器が対物レンズ上部に配置されると、シンチレータへの印加電圧(+10kV)で一次電子線も偏向作用を受けて一次電子線を対物レンズの中心に通すのが困難になる。そのため、一次電子線に偏向作用を与えない信号検出技術が高分解能SEMの性能を最大限に引き出すための課題となった。この課題を解決する技術として、電界(E)と磁界(B)を交叉(さ)させるExB(E cross B)方式の信号検出系が開発された¹⁰⁾。

ExB方式の信号検出系の構成を図10に示す。ExBでは、メッシュ電極と対向電極で電界Eを発生させ、これと直交する方向に磁界Bを発生させる。一次電子線は電界と磁界からそれぞれ逆向きの力を受けるため、両者が互いに打ち消すように電界と磁界の強さを設定すると一次電子線は偏向されない。一方、信号電子は一次電子線と逆向きに進行するため、磁界から受ける力が一次電子と逆向きになる。したがって、信号電子は電界と磁界の両方からメッシュ電極側に強い偏向作用を受けて、メッシュ電極を通過してUpper検出器のシンチレータに到達する。

4.2 試料情報の弁別

試料から放出される信号電子にはさまざまな情報が含まれ、観察目的によっては、特定の信号成分を弁別することが有効である。そこで、高感度信号検出技術に加えて、試料情報を弁別して可視化するための試料情報制御(弁別)技術が開発された。最近のFE-SEM(S-5200形、S-5500形、S-4800形)で弁別できる試料信号を図11に示す。試料からの信号電子は、エネルギーの低い二次電子(SE: Secondary Electron)とエネルギーの高い反射電子

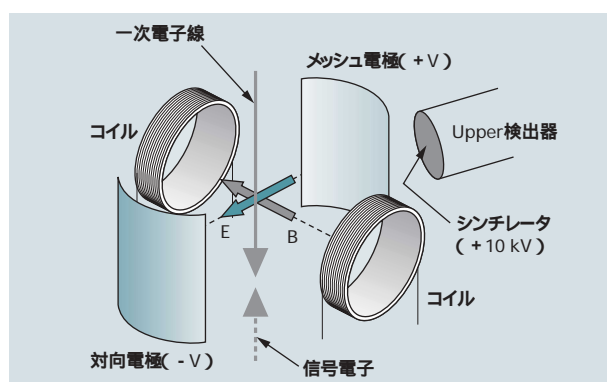


図10 ExB方式の信号検出系の構成
ExB(E cross B)方式の信号検出系の構成を示す。

(BSE : Backscattered Electron) に大別できる。BSEはその放出方向によって凹凸情報や組成情報が異なるため、BSEを高角成分 (BSE-H) と低角成分 (BSE-L) に分けて検出する機能を設けている¹¹⁾。

Niを含有したアルミナ (絶縁物) を、S-5200形の各信号モード (SE, BSE-L, BSE-H) で観察したSEM像と、S-4800形のLower検出器で観察したSEM像を図12に示す。同図に示すように、この試料の場合、弁別する信号によって可視化される情報が大きく異なることがわかる。

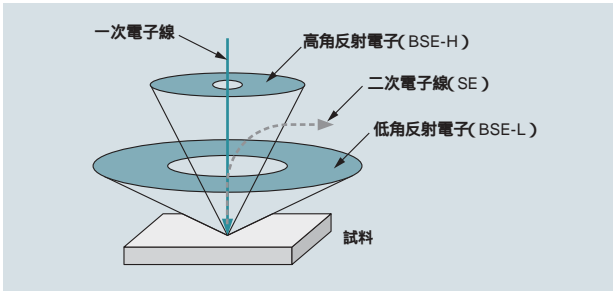


図11 試料からの信号電子の弁別 (Upper検出器) 最近のFE-SEMで弁別できる試料信号を示す。

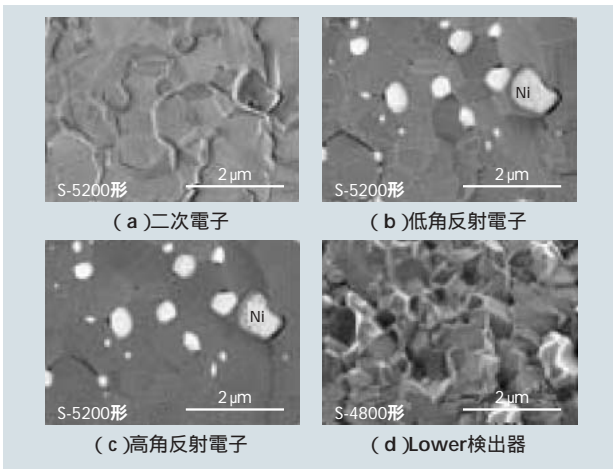


図12 各種信号のコントラストの違い (1) 加速電圧は2 kV, 試料はアルミニウムニッケルナノコンポジット (試料提供: 大阪大学産業科学研究所 関野徹先生), 装置はS-5200形/S-4800形である。

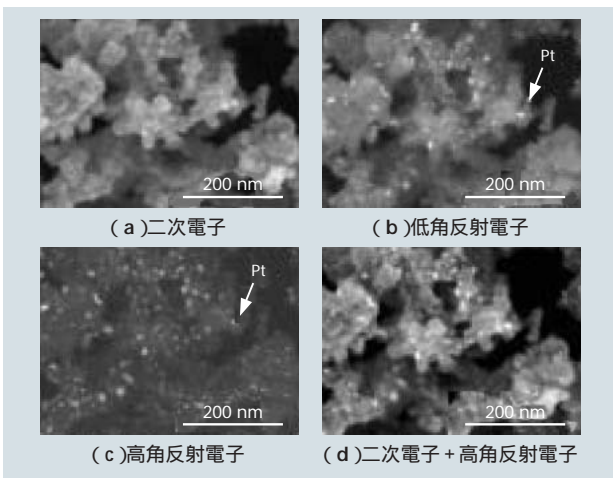


図13 各種信号のコントラストの違い (2) 加速電圧は2 kV, 試料は触媒 (C/Pt), 装置はS-5200形である。

炭素 (C) と白金 (Pt) 微粒子から成る触媒の観察例を図13に示す。この場合、二次電子では炭素の表面情報がよく可視化され、低角反射電子 (BSE-L) では比較的表面付近の白金微粒子と凹凸情報が可視化されている。一方、高角反射電子 (BSE-H) は主にPt微粒子の情報 (組成情報) が主体であり、この情報と二次電子情報とを合成すると、図13(d)のように、表面とPt微粒子の両方が高コントラストで可視化できて白金の分散状態がよくわかる。

4.3 透過電子の情報制御

試料の内部構造を高分解能に観察するには、試料を透過した電子を信号電子として用いるのが有効である。これを走査透過電子顕微鏡 (STEM : Scanning Transmission Electron Microscope) 法という。試料を数100 nm以下に薄膜化すると、通常のSEMの加速電圧 (30 kV) でも一次電子線が容易に透過する。試料を透過した電子 (透過電子) には試料の内部情報が反映されるが、その情報は透過電子の散乱角によって異なる。散乱角の違いによる透過信号の分類を図14に示す。散乱角が0 (軸上) を含む範囲の透過信号を明視野信号、軸上を含まない散乱角範囲の透過信号を暗視野信号という。明視野信号には、試料の粗密情報や電子の回折情報などが含まれる。一方、暗視野信号は、その検出散乱角によって可視化される情報が異なることが知られている。軽い元素と重い元素に対する散乱角と散乱強度の関係を図15に示す。重い元素

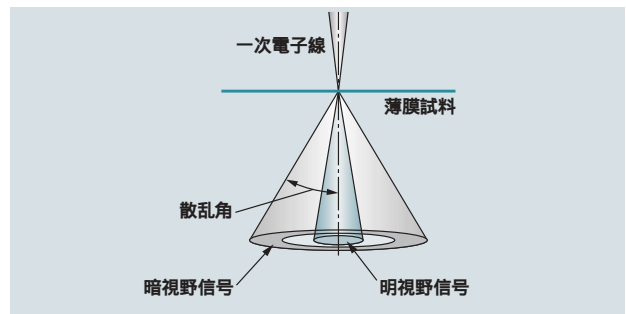


図14 透過電子の明視野信号と暗視野信号 散乱角の違いによる透過信号の分類を示す。

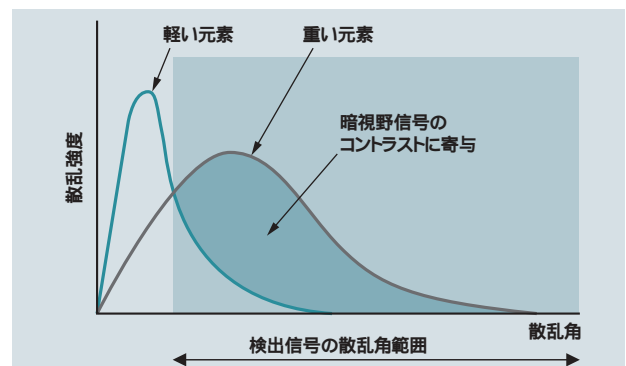


図15 暗視野透過信号電子の散乱角と散乱強度の関係 軽い元素と重い元素に対する散乱角と散乱強度の関係を示す。

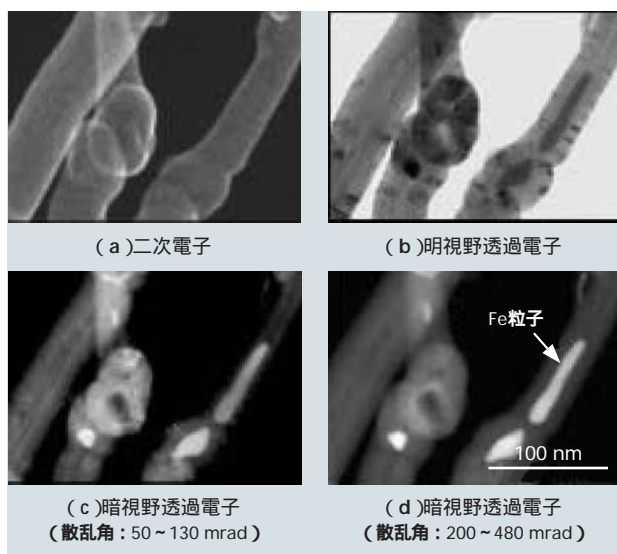


図16 各種信号のコントラストの違い(3)

加速電圧は30 kV, 試料はCNT(Feを内包), 装置はS-5500形である。

ほど透過電子の散乱角が大きくなるため、検出散乱角を適切に設定すると、試料の原子番号差が可視化できる。

カーボンナノチューブ(CNT)を二次電子, 明視野透過電子, および検出散乱角の異なる暗視野透過電子でそれぞれ可視化した像を図16に示す。このCNTには鉄の微粒子が内包されており、この分布状態を他の情報と分離して最もよく可視化できるのが、図16(d)の暗視野像(散乱角: 200~480 mrad)である。暗視野信号の適切な検出散乱角は、試料の構成元素や厚さによって異なるため、最新のインレンズSEM(S-5500形)では、アニュラー形暗視野信号検出器を光軸上で移動して検出散乱角の範囲を制御し、暗視野信号の情報弁別を可能にしている。

5 おわりに

SEMは1935年に考案されて以来、今日までに飛躍的な進歩を遂げた。特に、FE電子源は超高分解能SEMの実現に欠かせない画期的な技術であり、この電子源でSEMの性能を初めて電子の波長限界(回折限界)まで引き出すことができた。その後、対物レンズや信号検出系の技術革新により、さらなる高分解能化と高コントラスト化が図られ、超高分解能SEMは半導体や材料、バイオなどの最先端分野の研究開発に欠かせないツールとして定着している。

今後の技術動向としては、図17に示すような多極子を用いた収差補正技術が分解能に対する次のブレークスルーとして期待されている。この技術は、SEMの分解能を制限する対物レンズの球面収差と色収差をキャンセルする逆極性の収差を発生させる技術である。収差補正技術は、加速電圧が100 kV以上の透過電子顕微鏡や走査透過電子

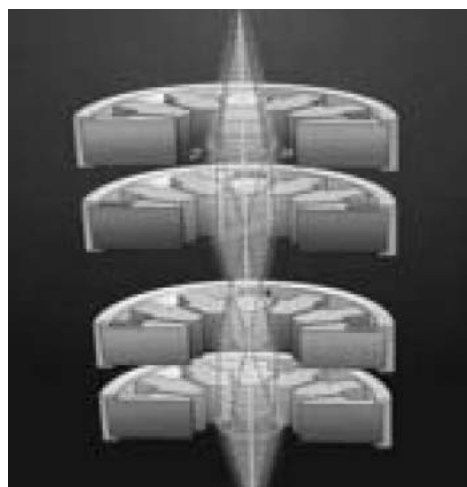


図17 多極子による収差補正器の例

SEMの分解能を制限する対物レンズの球面収差と色収差をキャンセルする逆極性の収差を発生させる技術である。

顕微鏡では実用レベルまで確立されているが、加速電圧の低いSEMの分野ではまだ課題が残っている。今後、SEMの収差補正技術の確立により、さらなる高分解能観察や微小領域の高感度分析が期待できる。また、各種画像処理技術の進歩と相まって、より高機能でユーザビリティの高い走査電子顕微鏡へと技術革新が進むものと考ええる。

最後に、この論文の作成にあたってご支援、ご協力をいただいた日立製作所 中央研究所の川崎氏、品田氏、日立ハイテクノロジーズ 那珂アプリケーションセンタの中川氏、多持氏、先端解析システム第1設計部技術顧問の齊藤氏、先端解析システム第1設計部の伊東氏ほか、関係者の方々に深く感謝の意を表する次第である。

参考文献

- 1) M.Knoll, Aufladepotential und Sekundäremission elektronenbestrahlter Körper, Z tech Phys 16, 467(1935)
- 2) McMullan, An improved scanning electron microscope for opaque specimens, Proc. Inst. Electr. Engrs 100, Part II, 245(1953)
- 3) O. C. Well, The construction of a scanning electron microscope and its application to the study of fibers, PhD Dissertation, Cambridge University (1957)
- 4) C. W. Oatley et al. : The examination of p-n junctions in the scanning electron microscope, J. Electronics 2, 568(1957)
- 5) A.V. Crewe et al. : Electron Gun using a field emission source, Rev. Sci. Instrum., 39, 576(1968)
- 6) T. Komoda and et al. : SEM Symp., Vol. 1, 129(1972)
- 7) T. Nagatani et al. : Scanning Microsc., 1, 90(1987)
- 8) 大高, 外 : 日本学術振興会 荷電粒子ビームの工業への応用 第132委員会 第109回研究会, 159(1989)
- 9) A. Muto et al. : Proc. Microscopy and Microanalysis 9, Suppl.2, 146(2003)
- 10) M. Sato et al. : Proc. SPIE 2014, 17(1993)
- 11) M. Sato et al. : Recent Res. Devel. Vacuum Sci. & Tech., Vol.3, 263(2001)