

# SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS

# HITACHI

1994  
VOL.37 No.1

## 目次

### 巻頭言

教育用TEM .....坂 公恭 -1

### 報文

有機金属気相成長法による細線成長  
比留間 健之 矢沢 正光  
勝山 俊夫 高口 雅成  
.....柿林 博司 -3

収束コヒーレント電子回折の実験

J. W. Steeds, R. Vincent,  
W. J. Vine, P. Spellward and  
D. Cherns ..... -8

### 解説

FIB(FB-2000/FB-4080)装置とその応用  
...石谷 亨 大西 毅 岩本 寛  
小池 英巳 広瀬 博  
.....坪井 秀樹 上野 武夫 -17

### 学会発表ニミファイル

日本電子顕微鏡学会第50回学術講演会,  
第55回分析化学討論会.....22

### 新製品紹介

P-4000形 ICP発光分析装置.....15

新形液体クロマトグラフ

「L-7000シリーズ」.....15

ナチュラルSEM用

「クールステージ」を発売.....24

### 技術資料 新刊紹介

テクニカルデータ最新版ダイジェスト ... 6

### ラウンジ

分析データを味わう .....21

### トピックス

- ・ピッツバーグ会議・展示会('94)開催 2
- ・第13回九州科学機器展開催.....16
- ・第14回ANALITICA'94開催 .....16
- ・名古屋最新科学機器展開催.....16
- ・日本電子顕微鏡学会  
第50回学術講演会開催.....16

## 巻頭言

### 教育用TEM

#### Transmission Electron Microscopes for Educational Purposes

坂 公恭\*

最近の材料系の学術論文には見事なTEM写真が多数掲載されている。特に、いわゆる先端材料の研究分野でこの傾向が顕著に見られる。このこと自体は大変結構なことであるが、これらの論文の著者に「ご自身でTEM写真を撮られたのですか?」と質問すると、分析専門の企業に試料作製から写真撮影までいっさいがっさい依頼したという返答にしばしば出くわす。TEM写真は、自分で苦労して試料を作製し、これまた一生懸命に覚えたTEM操作法を駆使して撮るものだとばかり信じていた筆者のようなOld Microscopistにはいささか抵抗を感じるところである。

しかし、筆者のこの感想はとりもなおさず、TEMで物を見るということは結構面倒なことであるということを認めていることでもある。機会があればTEMで観察してみたいがなかなかそこまで踏み切れないというTEM予備軍とも言うべき人達と話してみると、その理由としてまず第1にTEM試料作りの難しさ、煩わしさを挙げる人が多い。TEMで得られる情報が素晴らしいことは充分わかっているのだが、試料作りの煩雑さを考えると、つついSEMで間に合わせてしまうというわけである。SEMによって得られる情報も最近では随分増しているの、これはこれでやむを得ない面もあるが、TEMへのアクセスを妨げている要因の1つが試料作りの困難さであることは否定できない。

TEM試料の作製法に関しては、米国のMRS (Materials Research Society) などではしばしばシンポジウムが開かれているが、日本の場合、なんとはない、試料作りは各自、自分で苦労して修得すべしといったような徒弟制度的な発想があることが気掛りではある。試料のある特定の部分をピンポイントで観察する必要性が増してきている昨今、TEM試料作りの体系化、単純化、ルーチン化が急務であろう。

TEMの利点はなんにも点ボチの高分解能を競うのみではあるまい。分解能や操作性をある程度犠牲にしても廉価な教育用TEMともいうべき機種の実用性は無いのだろうか? 言うまでもなく、光学顕微鏡は全国津々浦々の小学校に行き渡り、全小学



\* 名古屋大学工学部材料機能工学科 教授

生が理科の授業で色々なものを光学顕微鏡で観察している。初めて光学顕微鏡で花粉などを観察した時の感激を覚えている人も多いことであろう。明治の初期に顕微鏡が貴重な輸入品であった時代からは想像もつかないことである。

いっそのこと小学校の光学顕微鏡の例にならって、全国の中学校にSEM, 高等学校にTEMを設置してみたらいいかなものか。未知の物、肉眼では見えない物を見たいというのは人間の基本的な欲求であり、自然の観察こそあらゆる自然科学の基礎である。Naturwissenschaften sind nur Naturbeobachtung. である。このような少年・青年期での自然との出会いが将来の進路を決定するときに、意識するしないは別として理系を選択させる方向に働くことを期待するのは少し楽天的に過ぎようか。現在、憂慮されている優秀な学生の理系離れにも歯止めが掛かるであろう。これこそ、技術立国日本にとって国家百年の計というものであると思うがいかなるものであろうか。

### 筆者略歴

|                 |                                        |
|-----------------|----------------------------------------|
| 現住所             | 愛知県春日井市高座台1丁目5番53号                     |
| 氏名              | 坂 公恭(さか ひろやす)                          |
| 生年月日            | 昭和16年12月21日生                           |
| 昭和39年3月         | 名古屋大学工学部金属学科卒業                         |
| 4月              | 名古屋大学大学院工学研究科修士課程<br>金属工学専攻入学          |
| 41年3月           | 同上修了                                   |
| 4月              | 名古屋大学大学院工学研究科博士課程<br>金属工学専攻進学          |
| 44年3月           | 同上満了                                   |
| 4月              | 名古屋大学大学院工学研究科<br>研究生入学                 |
| 45年10月          | 同上退学                                   |
| 11月             | 名古屋大学助手(工学部)に採用                        |
| 47年3月           | 工学博士                                   |
| 54年9月           | 名古屋大学助教授(工学部)に昇任                       |
| 63年4月           | 名古屋大学教授(工学部)に昇任                        |
| 昭和44年10月~45年10月 | 日本学術振興会奨励研究員                           |
| 昭和52年9月~54年8月   | ブリティッシュ・カウンシル・スカラー<br>(英国オックスフォード大学留学) |

### 受賞

|         |              |
|---------|--------------|
| 昭和50年5月 | 日本電子顕微鏡学会瀬藤賞 |
| 昭和56年5月 | 村上奨励賞        |
| 昭和62年4月 | 日本金属学会功績賞    |

## Topics

### ピッツバーグ会議・ 展示会('94)開催

4年ぶりにPittsburgh Conferenceがシカゴに帰ってきた。ミシガン湖一面が流水で覆われ、寒さの厳しい2月27日から3月4日まで開催された。登録人員は3万1,000人を超えていた。

今年の特筆すべきことは、展示場の一角に将来設立される分析機器の博物

館の前駆ともいえるべき Antiquities Museumが開設されたことである。筆者らの学生、院生時代はシングルビームの紫外可視分光光度計として名声を築いたBeckman DUや、シングルビームの赤外分光光度計を用いて苦労して測定した。だれからともなく「これでスペクトルを1枚とるのに一晩かかったな、赤外では2日もかかったよ」と感慨深げに見ていた。またパーキンエルマー社の基礎を築いたIR-21型赤外分光光度計や先達の人々の写真も展示され、Pittsburgh Conferenceの果たした役割の大きさに感じ入っていた。日本から

は日立製作所の回折格子、浜松フォトリニックスの光電子増倍管、日本分光の旋光分散装置が展示品に選ばれた。

学会は装置そのものよりも、新しい分析手法に重点がおかれていた。特に質量分析は昔と異なり、もはや検出器の一部でしかなかった。

展示会は、前処理の自動化装置が百花繚乱(りょうらん)のごとく展示されていた。この裏にはISO-9000があり、分析値の正確さ、精密さ、再現性の追求から、人手による誤差の低減が前提になっていた。

(保田和雄 記)

## 報 文

## 有機金属気相成長法による細線成長

## Wire Growth by Metal Organic Vapor Phase Epitaxy

比留間 健之\* 矢沢 正光\* 勝山 俊夫\* 高口 雅成\* 柿林 博司\*

(平成6年4月15日受理)

## 1. はじめに

近年、電子を100 nm以下の幅を持つ線状あるいは箱状の半導体内に閉じ込め、量子効果を利用して電子素子や光素子の性能を向上させようとする研究が活発になってきている。寸法100 nm以下の線状や箱状の領域に電子を閉じ込める量子閉じ込め構造の作製法として、分子線エピタキシー法やMOCVD (有機金属気相成長法) を用いて、例えば、GaAs表面にGaAs/AlGaAsヘテロ接合超格子を成長する方法<sup>1), 2)</sup>, GaAs基板上にSiO<sub>2</sub>マスクパターンを形成し、マスクパターン開口部にだけ選択的に結晶成長する方法<sup>3)</sup>, GaAs基板上にエッチングでV字型の溝を形成し、溝の部分にGaAs

を線状に成長する方法<sup>4)</sup> などが検討されている。

この報告では、GaAs針状結晶 (whisker) を利用した細線構造をMOCVDで成長する方法について述べる。また、結晶構造解析についても触れる。

## 2. 針状結晶の成長方位

針状結晶の成長方向の基板面方位依存性を図1, 2に示す。図1, 2では、針状結晶の走査電子顕微鏡写真とともにGaAs基板を(110)方向から見た表面付近でのGa原子とAs原子の組み立てのようすを模式的に示した。図1, 2から、GaAs針状結晶は基板表面でのAs原子の空結合手 (ダングリングボンド) の方向、すなわち、(111) As [ (111) B]

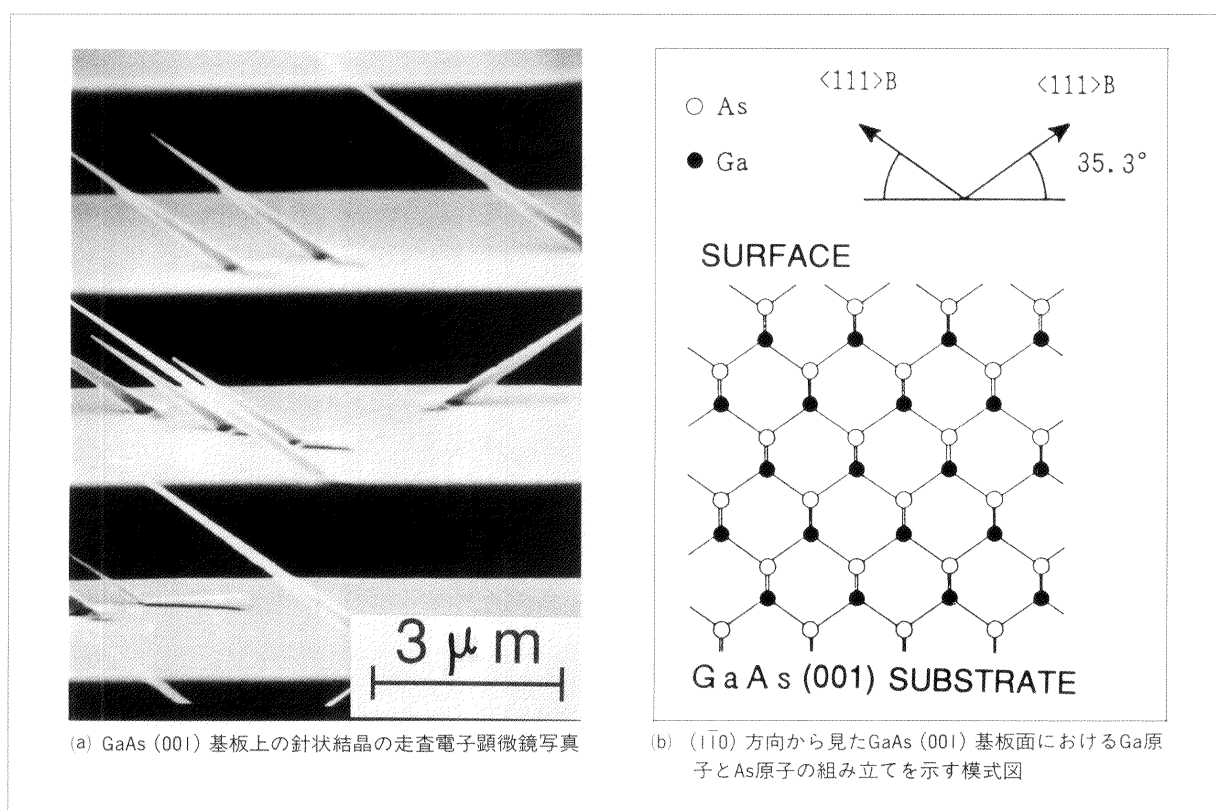
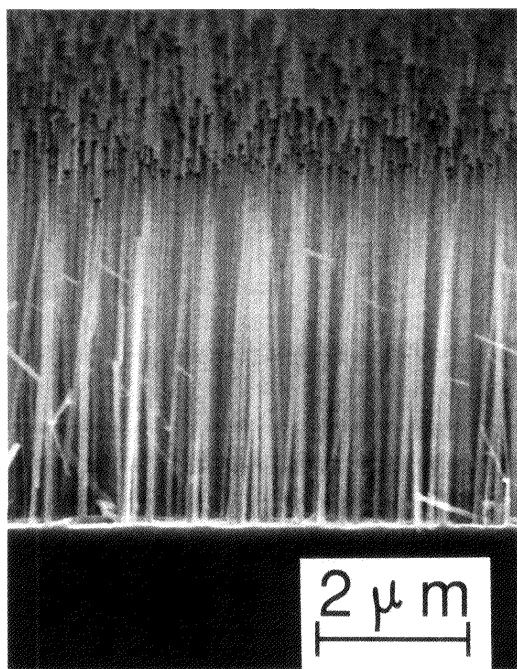


図1 GaAs針状結晶の成長方向と基板面方位との関係

\* 株式会社日立製作所 中央研究所



(a) GaAs (111) B基板上的針状結晶の走査電子顕微鏡写真

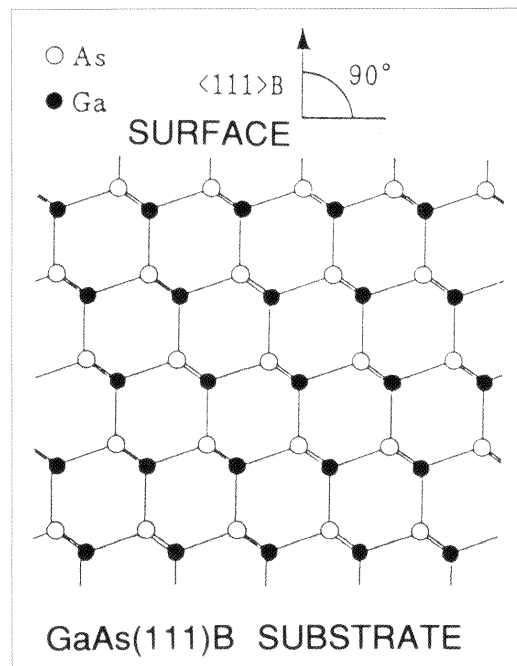
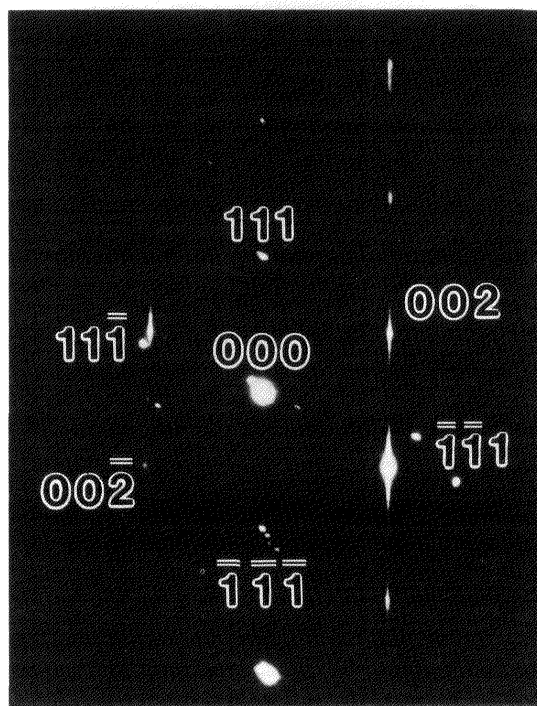
(b)  $(\bar{1}\bar{1}0)$  方向から見たGaAs (111) B基板表面におけるGa原子とAs原子の組み立てを示す模式図

図2 GaAs針状結晶の成長方向と基板面方位との関係



(a) 透過電子顕微鏡像



(b) 電子線回折パターン

図3 GaAs針状結晶の透過電子顕微鏡による観察  
針状結晶の成長温度480℃

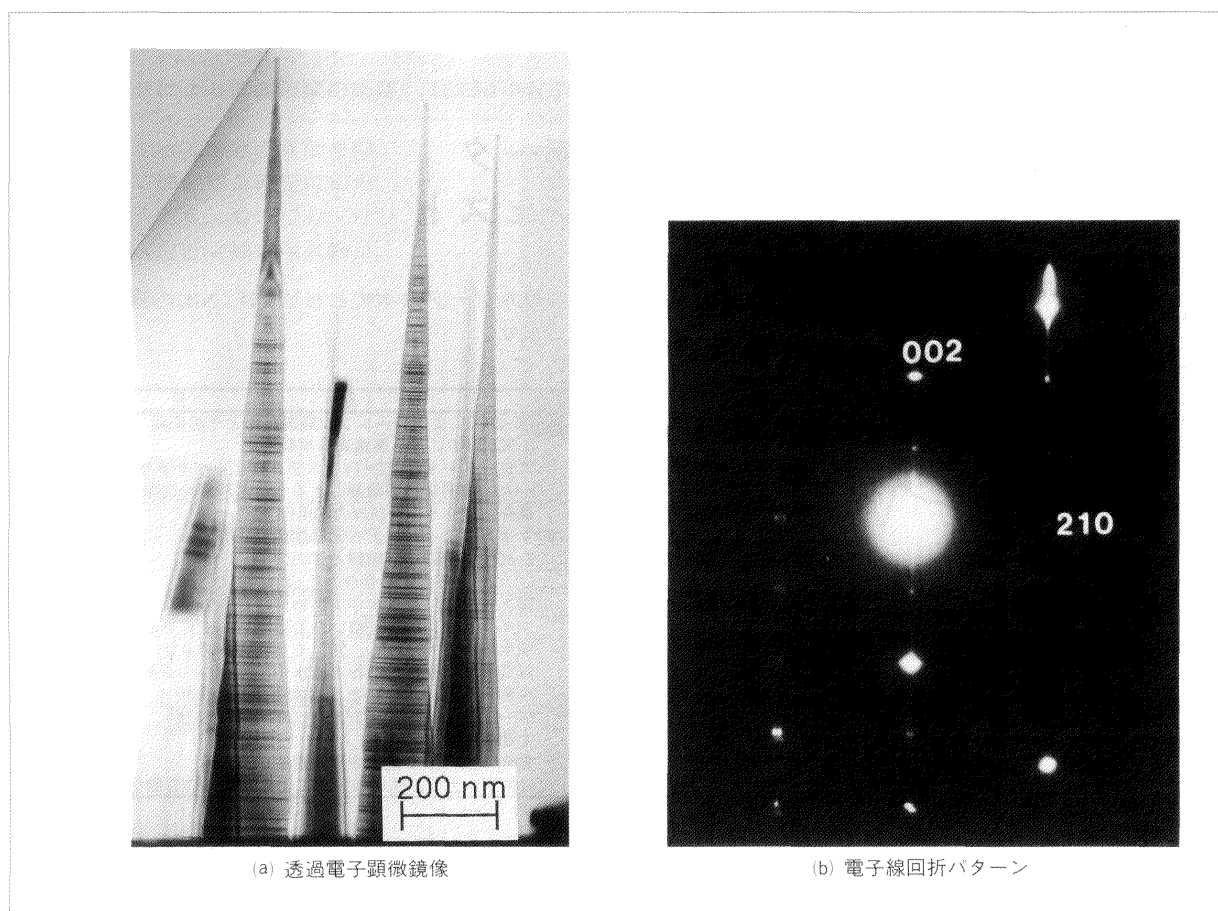


図4 GaAs針状結晶の透過電子顕微鏡による観察  
針状結晶の成長温度520℃

方向に成長していることがわかる。他の結晶面基板を用いても、針状結晶の成長方向は常に(111)Asであることがわかった。

### 3. 結晶構造

針状結晶の結晶構造を透過電子顕微鏡による観察から解析した。透過電子顕微鏡観察には日立製作所製の透過電子顕微鏡H-800およびH-9000UHVを用いた。GaAs針状結晶の透過電子顕微鏡像と電子線回折パターンを図3、4に示す。図3に示した針状結晶は成長温度480℃であり、図4に示した針状結晶は成長温度520℃である。図3、4から、針状結晶の透過電子顕微鏡像には長さ方向(成長方向)に黒白の濃淡縞(しま)が見える。電子線回折パターンでは、回折スポットの配列から、図3に示したGaAs針状結晶は、せん亜鉛鉱型の結晶構造とほぼ同じ回折スポットの配列を持っていることがわかる。一方、図4に示した針状結晶はウルツ鉱型の結晶構造とほぼ同じ回折スポットの配列を示す。また、針状結晶の透過電子顕微鏡像で成長方向に現れている黒白の濃淡縞は、針状結晶が成長軸周りに双晶構造をとっていることを示唆する。通常、GaAsはせん亜鉛鉱型の結

晶構造をとることが知られている。しかし、この報告のように、ウルツ鉱型の結晶構造をとることはほとんど知られていない。

### 4. まとめ

寸法100 nm程度以下の細線形成にMOCVDによる針状結晶を利用する手法について述べた。透過電子顕微鏡による解析から、針状結晶はせん亜鉛鉱型とウルツ鉱型のいずれかの結晶構造をとることがわかった。

この研究の大部分は、産業科学技術開発制度の一環としてFED(財団法人新機能素子研究開発協会)が、NEDO(新エネルギー・産業技術総合開発機構)から委託を受けて、実施したものである。

### 参考文献

- 1) P. M. Petroff, A. C. Gossard and W. Wiegmann : Appl. Phys. Lett. 45 (1984) 620.
- 2) T. Fukui and H. Saito : J. Vac. Sci. Technol. B6 (1988) 1373.
- 3) 福井, 安藤: 真空, 第34巻, 第5号, 499 (1991)
- 4) N. H. Karam, A. Mastrovito, V. Haven, K. Ismail, S. Pennycook and H. I. Smith : J. Cryst. Growth 107 (1991) 591.



技術資料  
新刊紹介

## テクニカルデータ 最新版ダイジェスト

最近発行されたテクニカルデータは次のとおりです。No.の欄に\*印を付けた項目について簡単に紹介します。

| 種 別    | NO. | 題 目                          |
|--------|-----|------------------------------|
| TEM    | 67* | HF-2000によるローレンツ顕微鏡法とその応用     |
|        | 68* | H-9000NARによる高温高分解能観察         |
|        | 69  | スロースキャンCCD-TVシステムによるバクテリアの観察 |
|        | 70  | H-7100透過電子顕微鏡によるつなぎ写真の応用     |
| SEM    | 74  | 高分解能クライオSEMの応用例              |
|        | 75* | クールステージによる低温観察の応用            |
|        | 76  | S-4000走査電子顕微鏡とその応用           |
| MS     | 56* | LC/APCI-MSによる低極性化合物の分析       |
| UV-VIS | 129 | 吸光度法による水中有害物質の自動分析           |
| FL     | 41  | マイクロプレートを用いた微量試料の蛍光自動分析      |
| AA     | 81  | 海水中的カドミウム、鉛、モリブデンの分析         |
|        | 82  | 無電極放電管を用いた水道水中のAs、Seの分析      |
|        | 83* | 自動QCソフトを用いた河川水中のCrの分析        |
| MIP    | 10* | MIP-MSを用いた生体試料中の微量金属分析       |
| LC     | 124 | 生薬中成分の分析                     |
|        | 125 | 蛍光検出による食品中残留農薬の分析            |
|        | 126 | PMPプレカラム誘導体化法による糖分析の自動化      |

### 1. HF-2000によるローレンツ顕微鏡法とその応用 (TEM No. 67)

光源が小さく、しかもその電子線のエネルギー幅の小さい冷陰極電界放出形の電子銃を備えたHF-2000はローレンツ顕微鏡法に適した透過電子顕微鏡と言えます。コバルト薄膜に関して軸上磁束密度を変えたさまざまなローレンツ像が紹介されています。

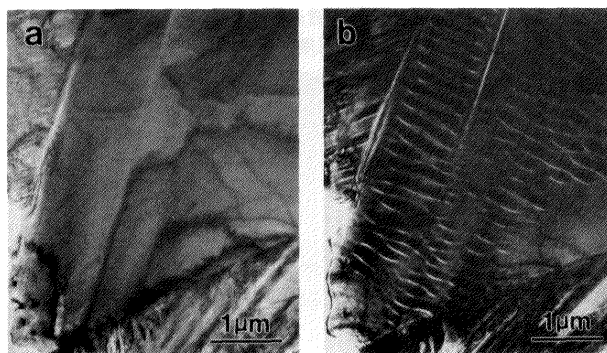


図1 コバルト磁気膜のローレンツ顕微鏡像  
垂直磁場強度 a: 0T, b: 0.2T

### 2. H-9000NARによる高温高分解能観察 (TEM No. 68)

SiとCが1,500℃に熱せられてSiCが生成する劇的なプロセスの観察に成功しました。

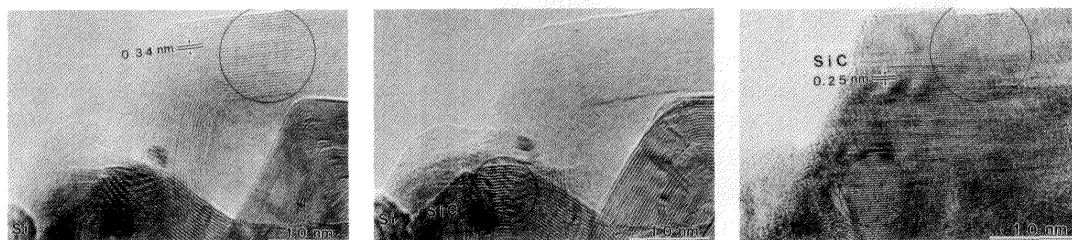


図2 Siとグラファイトの過熱による構造変化  
加速電圧: 300 kV 直接倍率: 300,000倍 ヒーター温度: 1,400℃

### 3. クールステージによる低温観察の応用 (SEM No.75)

冷却することによって水分の蒸散を抑えて含水試料の長時間観察を可能にしたのがクールステージです。菊の花心、リンゴの果肉、米など身近な観察対象物が紹介されています。

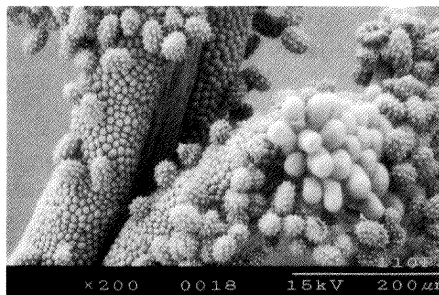


図3 菊の花心

### 4. LC/APCI-MSによる低極性化合物の分析 (MS No.56)

APCI法は農薬、アミノ酸など中極性化合物の分析に最も効果なイオン化法とされてきました。移動層としてヘキサン・エタノールを用いるとピレン、コロネンなど無極性化合物の分析が可能です。

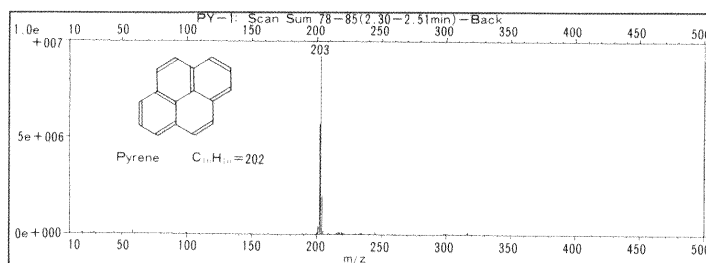


図4 ピレンのマススペクトル

### 5. MIP-MSを用いた生体試料中の微量金属分析 (MIP No.10)

超高感度分析法としてICP-MSが登場し、各種物質中の微量元素の研究が盛んですがアルゴンのイオン線がオーバーラップするAs, Seの測定に難点がありました。アルゴンを使用しないMIP-MSなら容易に測定することができます。標準物質(牛の肝臓)を分析し精度の高さを確かめました。

表1 牛肝臓(NIST, SRM-1577)の分析結果

Analytical results of Bovine liver  
(NIST, SRM-1577)

単位:  $\mu\text{g/g}$

| 元素 | MIP-MS            | 保証値               |
|----|-------------------|-------------------|
| As | $0.055 \pm 0.004$ | $0.055 \pm 0.005$ |
| Se | $1.31 \pm 0.05$   | $1.1 \pm 0.1$     |
| Cd | $0.35 \pm 0.03$   | $0.27 \pm 0.04$   |
| Pb | $0.37 \pm 0.01$   | $0.34 \pm 0.08$   |

### 6. 自動QCソフトを用いた河川水中のクロムの分析 (AA No.83)

水道法の改正(平成5年12月施行)は基準値の変更と項目数の増加だけでなく、感度や回収率など測定精度管理が加わりました。これを的確に、しかも能率よく実行するためには自動QCソフトが便利です。各種のQC項目がCr測定を例にとり紹介されています。

|                  |     |      |    |      |           |
|------------------|-----|------|----|------|-----------|
| QCS              | 1-1 |      |    | 0.94 | 0.0289    |
| QCS              | 1-2 |      |    | 0.89 | 0.0273    |
| 平均               |     | 0.92 | SD | 0.04 | RSD 4.35% |
| No.1             |     |      |    |      |           |
|                  | 1-1 | 0.32 |    | 0.32 | 0.0106    |
|                  | 1-2 | 0.32 |    | 0.32 | 0.0105    |
| 平均               |     | 0.32 | SD | 0.00 | RSD 0.00% |
| A                | 1-1 |      |    | 1.12 | 0.0341    |
| A                | 1-2 |      |    | 1.08 | 0.0330    |
| 平均               |     | 1.10 | SD | 0.03 | RSD 2.73% |
| スパイクリカバリ値=98.00% |     |      |    |      |           |

図5 QCデータの一例

## 収束コヒーレント電子回折の実験

## Exploratory Experiments in Convergent Beam Coherent Electron Diffraction

(この論文はActa Microscopicaに掲載  
されたものを要約したものである<sup>b)</sup>)

J. W. Steeds, R. Vincent, W. J. Vine, P. Spellward and D. Cherns<sup>a)</sup>

## 要 旨

可干渉(コヒーレント)な電子源を搭載した新しい透過電子顕微鏡を使用して、SiCのポリタイプ(構造多型)(6H, 15Rおよび4H)によるコヒーレント電子回折実験を行った。収束電子回折における電子線の可干渉性の効果を明らかにした。収束電子回折図形に見られるさまざまな干渉効果について議論し、将来の研究の見通しについて述べる。

## 1. はじめに

現在、透過電子顕微鏡は信頼性の高い電界放出型電子銃と回折機能とを組み合わせ、高い空間分解能で電子回折の実験を行うことができる。その回折現象は、電子線のビーム径とユニットセルの大きさとの大小関係によって大いに異なることが知られている。ビーム径が投影されたユニットセルより大きな場合には、熱電子銃のようなインコヒーレント電子源を用いた従来の収束電子回折(CBED: Convergent Beam Electron Diffraction)と本質的に同じである。ただし、各種の新しい応用<sup>1)</sup>に対してより高い空間分解能を提供できる。一方、ビーム径が投影されたユニットセルと同等かそれよりも小さな場合は、収束コヒーレント電子回折(CBCED: Convergent Beam Coherent Electron Diffraction)が可能になる。これはすでにいくつかの研究所、特にアリゾナ大学COWLEYおよびSPENCE<sup>2), 3)</sup>らの仕事によって予想されていた。しかし、これらが日常的に探究され、CBCED法の可能性が評価されたのは今までになかったことである<sup>4)</sup>。この論文では、上述の新しい透過電子顕微鏡によって得られた最初の結果を示す。以下に示すようにCBCEDにより、回折波相互の相対的な位相情報が簡単かつ直接得られる。これを発展させて何が得られるのかについても検討する。

## 2. 実験方法

実験は、日立HF-2000冷陰極電界放出型電子顕微鏡を用い、加速電圧200 kVで行った。まず光軸調整を注意深く行い、電子線の直径を1 nm(半値幅)にした。次に、複数の照射レンズを組み合わせ、入射電子線の収束角を連続的に変化できるようにした。これにより試料面上に電子線を収束させたまま、回折図形の回折ディスクどうしの重なり具合を調節できるようになった。回折図形は、10秒の露出時間で撮影した。

試料には、現在構造材料としても電子材料としても幅広く注目されているSiCを用いた。

SiCにはC軸方向の周期が異なる多くのポリタイプ(構造多型)が存在し、その一般的なものは比較的容易に得ること

ができる。今回の実験にはC軸の周期が、1.0 nm, 1.25 nm, 1.5 nmにそれぞれ相当する4H, 15R, 6Hと呼ばれるポリタイプを用いた。

## 3. 理論的背景

この実験では比較的大きな結晶格子を用いており、回折ディスクは互いに十分に近いことから、一次近似として対物レンズの球面収差の影響を無視することができる。さらに、運動学的回折理論が適用できるように、薄い試料膜厚を想定した。計算や解析は実際には動力学的回折理論に基づき行った。回折角が小さく、試料膜厚が薄いことからさらに単純化し、回折波の振幅や位相が回折ディスクの中で一定であると仮定した。

収差のない照射レンズ系の場合、試料上の電子線の強度分布はエアリーの式で表される。ユニットセルが単一の周期構造を持っていた場合、問題は一次元に簡略化できる。コンデンサ絞りと照射レンズ系の設定により、入射電子線(波数 $k$ )の収束角を $2K/k$ とすると、試料上の電子線強度分布は $\sin^2 Kx/K^2 x^2$ で表され、 $x=\pi/K$ のとき最初の最小強度を持つ。周期構造の周期を $d$ とすると、回折された電子線は $g=2\pi/d$ である。また、おのおのの回折ディスクを重ねるためには、 $2K>g$ でなければならない。これらの条件より

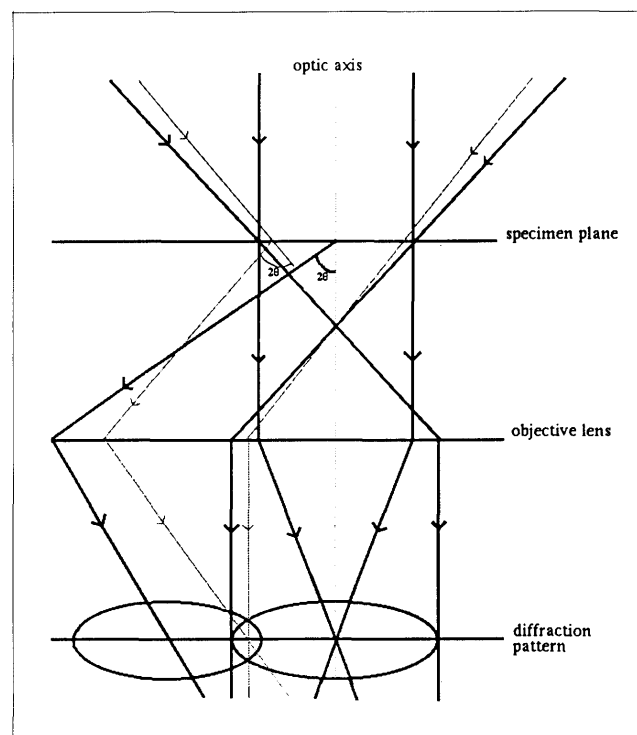


図1 収束コヒーレント電子回折の電子光線図  
(電子線が試料に焦点を結んでいる場合)

a) University of Bristol, United Kingdom

b) 株式会社日立製作所 日立研究所 本本浩司氏

ディスクを重ねてCBCEDを行うためには $d > \pi/K$ である必要があり、換言すれば、ビーム径がユニットセルと同等かまたはより小さいことが必要であることがわかる。

試料上に電子線が収束されている場合、二つの回折波 $g_1$ ,  $g_2$ の重なり部分の強度は、波の複素振幅および試料から重なり部分までの距離により決まる(図1)。二つの回折波の複素振幅 $A_1$ および $A_2$ のコヒーレントな重ね合わせのため、回折ディスクが重なった部分の強度 $I$ は、

$$I = A_1 A_1^* + A_2 A_2^* + A_1 A_2^* + A_2 A_1^*$$

運動学的な回折に対して比例係数を省くと、

$$A_1 = F_1 e^{i(\phi_1 + g_1 \cdot R)}$$

$$A_2 = F_2 e^{i(\phi_2 + g_2 \cdot R)}$$

ここで $F_1$ ,  $F_2$ は回折波 $g_1$ ,  $g_2$ のおおのの構造因子の振幅であり、 $\phi_1$ ,  $\phi_2$ は位相である。 $R(x, y)$ は投影されたユニットセル内での電子線の位置を示している。

したがって、

$$I = F_1^2 + F_2^2 + 2F_1 F_2 \cos(\phi_2 - \phi_1 + g x)$$

ここで、 $g = 2\pi/d = |g_2 - g_1|$ であり $x$ は $d$ の周期を持つ一次元的な構造での電子線の位置を示す。したがって、重なり部分の強度は二つの構造因子の相対的な位相に依存し、かつ電子線の位置によって周期 $d$ で振動する。そのときの最大値は、

$$I_{\max} = F_1^2 + F_2^2 + 2F_1 F_2$$

最小値は、

$$I_{\min} = F_1^2 + F_2^2 - 2F_1 F_2$$

である。

照射レンズ系を調節し、電子線の焦点位置 $d$ を試料面上から上方に $\Delta f$ ずらした場合には、電子線の入射方向により位相の原点が異なることになる(図2)。入射電子のうち、異なる角度を持つ電子線は、異なる位相の原点 $\Delta x = K \Delta f / k$ を持つ。回折面上での位置は $K$ であるから、 $K/k$ は光軸に対する相対的な伝播の角度である。重なり部分の強度は新しく次式で与えられる。

$$I = F_1^2 + F_2^2 + 2F_1 F_2 \cos[\phi_2 - \phi_1 + g(\chi + K \frac{\Delta f}{k})]$$

このように重なり合った部分には $g_1$ と $g_2$ を結んだ方向、すなわち $g$ の方向に垂直なフリンジが出現し、フリンジの間隔はデフォーカス量が増えるに従い細くなる。そのコントラスト(visibility)は次式により表される。

$$V = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} = \frac{2F_1 F_2}{F_1^2 + F_2^2}$$

コントラストは、 $F_1 = F_2$ の場合には1となり、 $F_1 \gg F_2$ の場合には $2F_2/F_1$ となる。

#### 4. 実験結果

##### (1) 試料上に電子線を収束させた場合

実験はまず6H-SiCを用い $\langle 1120 \rangle$ 晶帯軸で行った。C軸に平行な $(1\bar{1}0n)$ 面などの系統反射どうしの重なりが起こるように収束角を選び、その部分の電子線の位置に依存する強度を観察した。重なり部分の強度は電子線の位置に対して非常に敏感で、わずかな位置の変動によっても、ちらついてしまった。そこで、次に示すように第一照射レンズを操作し、電子線のクロスオーバーの位置を変化させて回折図形を撮影した。

##### (2) オーバーフォーカスビームの場合

入射電子線がオーバーフォーカスの状態では、何本かの平行フリンジが回折ディスクの重なり部分に観察される。オーバーフォーカスの度合いを強くすると、フリンジが細くなり、さらには見えなくなった(図3)。現在最高で約12本のフリンジが6H-SiCで観察されている。その場合、投影されたユニットセルはC軸の周期が1.5 nmであり、試料上で36 nmの電子線ビーム径に相当する。

このようにして得られたフリンジパターンを注意深く観察することにより、いくつかの興味深い特徴が明らかとなった。 $(1\bar{1}0n)$ などのような異なった系統反射の重なり部分は、異なる位相を持つことがわかった。フリンジの位相はある参照位置(例えば二つの隣接するディスクの交点を通る直線)との相対的な位置から評価することができる。系統反射の列は、隣接した列どうしでおおよそ $\pi$ の位相のずれを示した。 $(000n)$ 反射の中心を通る線について鏡映対称な列どうしても、おおよそ $\pi$ だけ位相がずれていた。この様子はまず6Hポリタイプで観察されたが、後の実験で4Hポリタイプでも同様に観察された。上述の様子を図4に図示する。従来のCBCED図形で観察されるべきC\*軸についての鏡映対称が無いことがわかる。15RのCBCED図形にもまた系統反射の列に沿ってフリンジの位相のずれが現われた。しかし、15RにはC\*軸での鏡映対称性がないので、系統反射の列どうしの位相関係は6Hおよび4Hのものとは異なる。

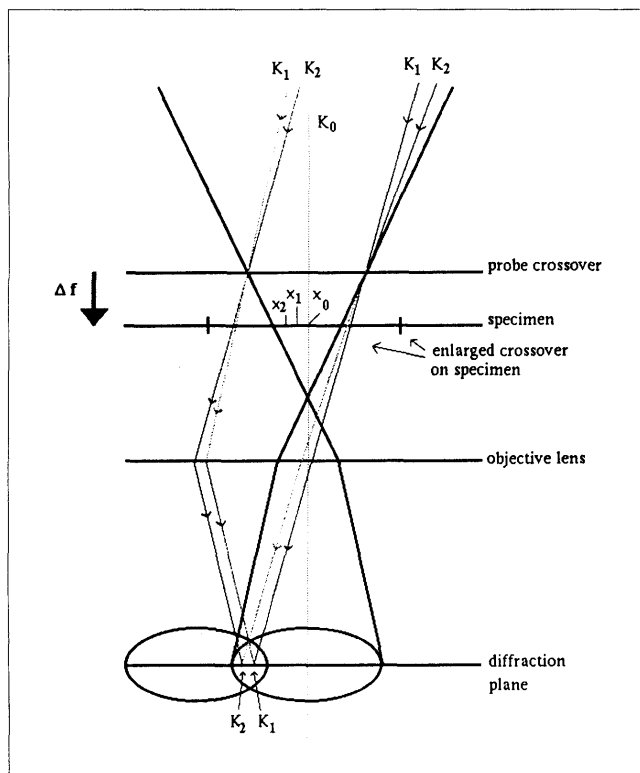


図2 焦点を外した場合の収束コヒーレント電子回折の電子光線図  
重なり合った部分の異なる方向に進む電子線は、異なる位相の原点を持つ( $x_0$ ,  $x_1$ および $x_2$ がそれぞれ $K_0$ ,  $K_1$ および $K_2$ の位相の原点となっている)。

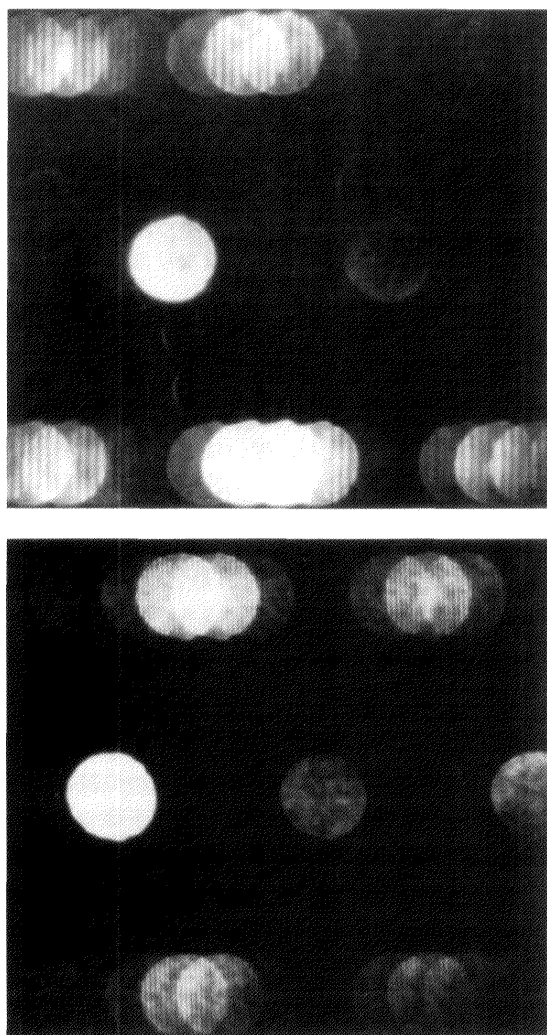


図3 実験で得られた6H-SiCのCBCED図形  
(加速電圧200 kV,  $\langle 1120 \rangle$  晶帯軸入射) コンデンサレンズにより、オーバーフォーカスの度合いを強めていくに従って、回折ディスクが重なり合った領域に見られるフリンジの間隔が狭くなっている。

同様の結果は、SiCの6H、15Rおよび4Hのポリタイプでも得られた。4HのC軸の周期が1 nmであったことから、使用した装置で得られた1 nmの電子線は十分に可干渉であることがわかる。しかし、フリンジが最も鮮明であったのは、C軸の周期が1.5 nmの6Hポリタイプであった。

4Hおよび6Hポリタイプにおいて、C\*軸で鏡映対称な反射どうしの位相のずれは結晶学的に興味深いことから、6Hポリタイプの膜厚の厚い試料の(000n)の系統反射の列を観察した。もし試料が正確に晶帯軸に合わせられていたならば、その系統反射の重なり部分のフリンジは連続でもなく平行でもなく、鏡映対称操作の線に沿って急峻(しゅん)な位相のずれを $\pi$ だけ持つであろう(図5)。

以上報告した観察例は、全て $[1120]$ の晶帯軸の0次ラウエゾーン内の反射に関するものである。同様な効果は他のラウエゾーンでも観察可能であろうか。試料の膜厚が適当であれば、 $\langle 1010 \rangle$ 晶帯軸で十分な強度も持った一次ラウエ

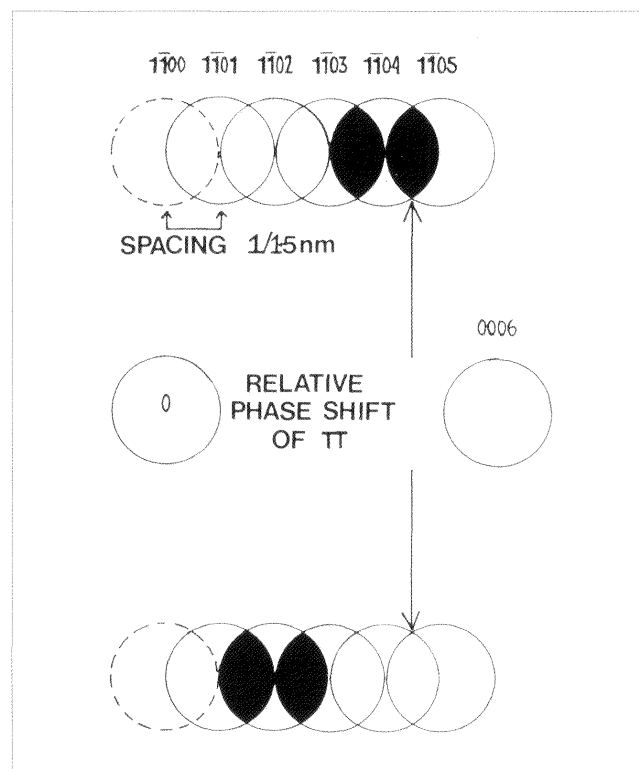


図4 図3に示した回折ディスクの指数

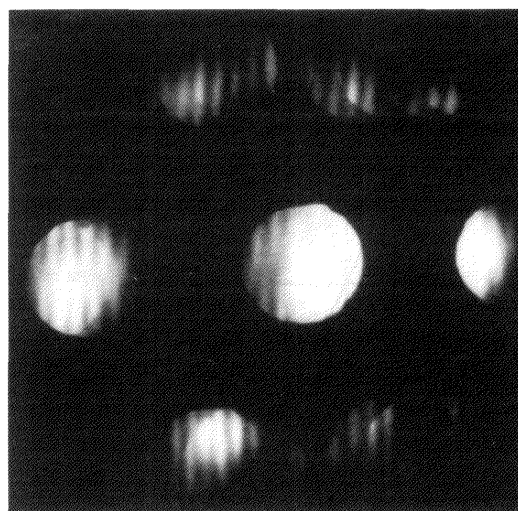


図5  $\langle 1120 \rangle$  6H-SiCに見られる位相のずれ  
回折図形の中央付近の三つの反射について、その中心線を境に、 $\pi$ の位相のずれを示している。

ゾーン (FOLZ: First Order Laue Zone) に属する回折波を、10秒程度の露出時間で撮影することが可能である。これが達成されれば、得られたネガから、C軸に垂直なフリンジによって変調されたFOLZリングが観察できる(図6)。デフォーカス量を変化させれば、フリンジの間隔が変化する。

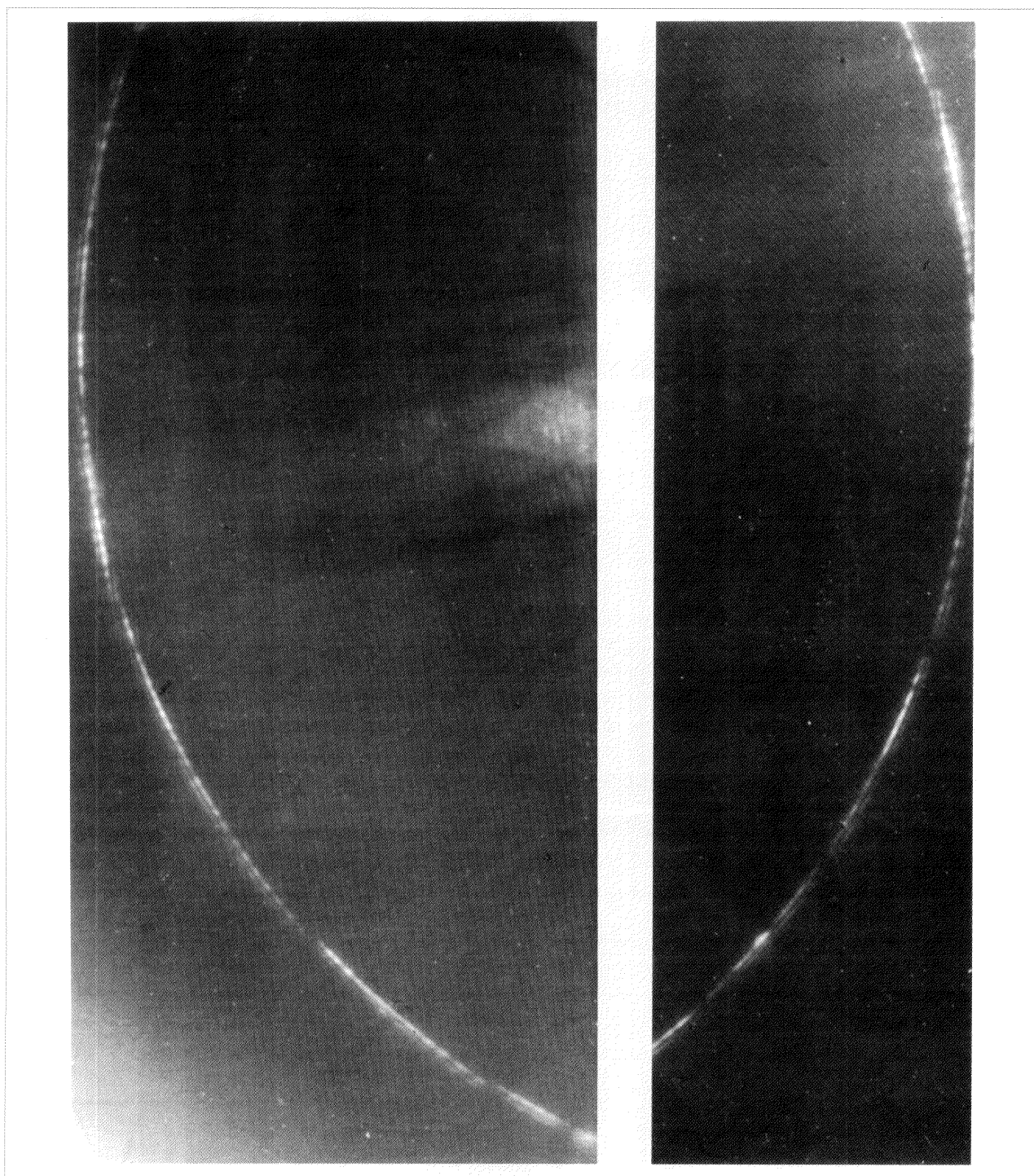


図6  $\langle 1010 \rangle$  6H-SiCの加速電圧200 kVの回折図形  
一次のラウエゾーンの反射に干渉縞（しま）が見られる。

## 5. 結果の検討

以上の実験結果から、CBCEDにより回折波の相対的な位相を決定できることが明らかとなった。さらに詳細に調べるために、3. に述べた理論的背景に基づき、動力学的回折理論により計算を行った。図7は6H-SiCの膜厚5 nmの試料について、デフォーカス量を0から変化させていった場合についての計算結果である。これらの計算結果と実験で

得られた写真とは、ほぼ一致している。重なり合った部分のフリンジの相対的な位相を把握しやすくするため、位相を図8に系統だてて示した。グラフでの中央の線は、隣接するディスクの交点を通る直線を表している。グラフの左側は重なり部分の上端に対応する。同図には $C^*$ 軸に対して鏡映対称の位置にあるフリンジに $\pi$ の位相のずれがみられ、さらに回折図形の中心を通る水平線に対して鏡映対称

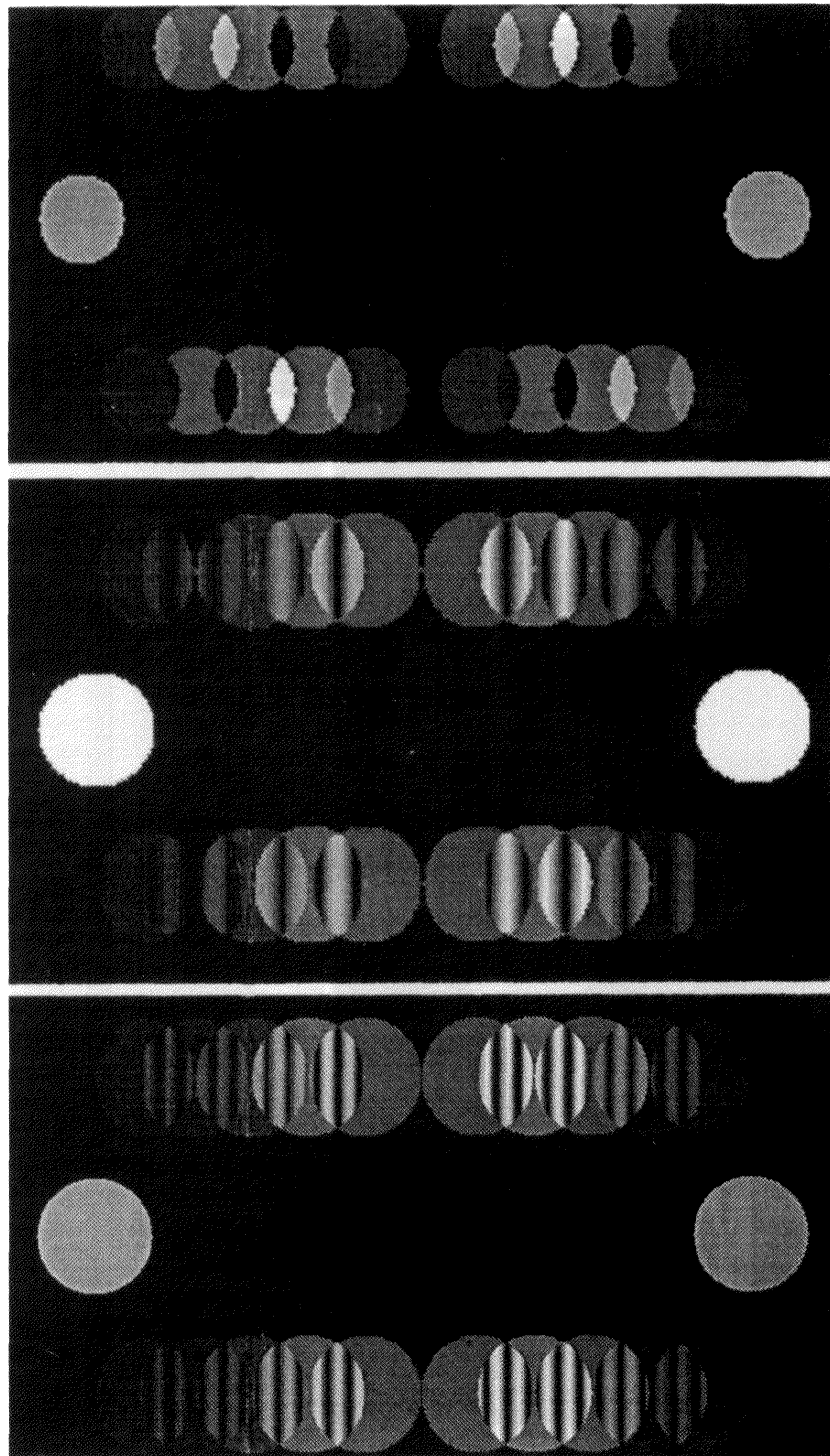


図7 試料上に電子線の焦点を結んだ場合(上), およびそれからデフォーカスしていった場合(中, 下)の収束コヒーレント電子回折図形の計算結果

の最初のフリッジどうしも,  $\pi$ の位相のずれがみられる。

膜厚が50 nmの試料についての計算も, わずかなフリッジの位相の補正によってほぼ同様の結果が得られた。しかし, 弱い反射にはコントラストは低いものの図8にはない新しい特徴がみられた。この詳細を明らかにするため, 図9でC\*軸に沿った重なり部分のうち強度の弱いもののコントラ

ストを強調して示す。先の図5ですでに述べた中心線に沿った $\pi$ の位相のずれが, 明瞭(りょう)に観察できる。これは晶帯軸方向に対し映進面が平行で, かつCBED図形がC\*軸と交差した結果得られたものであり, 従来のインコヒーレントなCBED図形でよく知られたG-Mライン<sup>5)</sup>にとって代わるものである。映進面はまたC\*軸についての鏡映対称

の位置にある反射どうしの $\pi$ の位相のずれの説明にもなっている。ゆえに、CBCED図形は真の対称性を示していると言える。真の対称性とは、映進面が鏡映面と並進操作との複合操作であるということと、得られた図形の対称性がこの複合操作と一致しているという意味である。

対になった回折波間の位相のずれの情報をすべて利用するためには、正確な測定（0次ラウエゾーンおよび一次ラウエゾーン全体にわたって撮影されたような写真）が必要であることは明らかである。先の図3に示したようなデフォーカス量を大きくして撮影した細かなフリンジも、正確な位相の測定の助けとなる。現在われわれは、画像をデジタル化することにより、位相計測の正確さを決定することを試みている。図形をデジタル化した部分の例と、図形中心部の強度のラインスキャンを合わせて図10に示す。現状でも $\pi/10$ 程度の位相変化を検出できるが、将来はフリンジ

の線に沿って強度を平均化することにより、位相決定の精度をさらに上げることができると思われる。

CBCED法による回折波間の位相の決定はどのように発展できるのであろうか。0次ラウエゾーンの平面に拡張するためには、回折波の二次元的な重ね合わせが必要である。結晶が十分に薄い場合、位相とは回折波の構造因子の位相である。しかし、動学的回折効果やエバルト球が平面とは見なせないことなどから、一般に得られた相対的な位相と構造因子の位相とは単純には結び付かない。重なり合った系統反射の列の、異なる列の間での動学的回折による位相変化も起こり得る。図5および9に示したような、運動学的に禁制な指数への二重回折などは、その適切な例である。またHOLZ反射とZOLZ反射との二重回折からHOLZリングと0次ラウエゾーンとの相対的な位相を決定できるかもしれない。一次近似ではHOLZラインはHOLZ分散

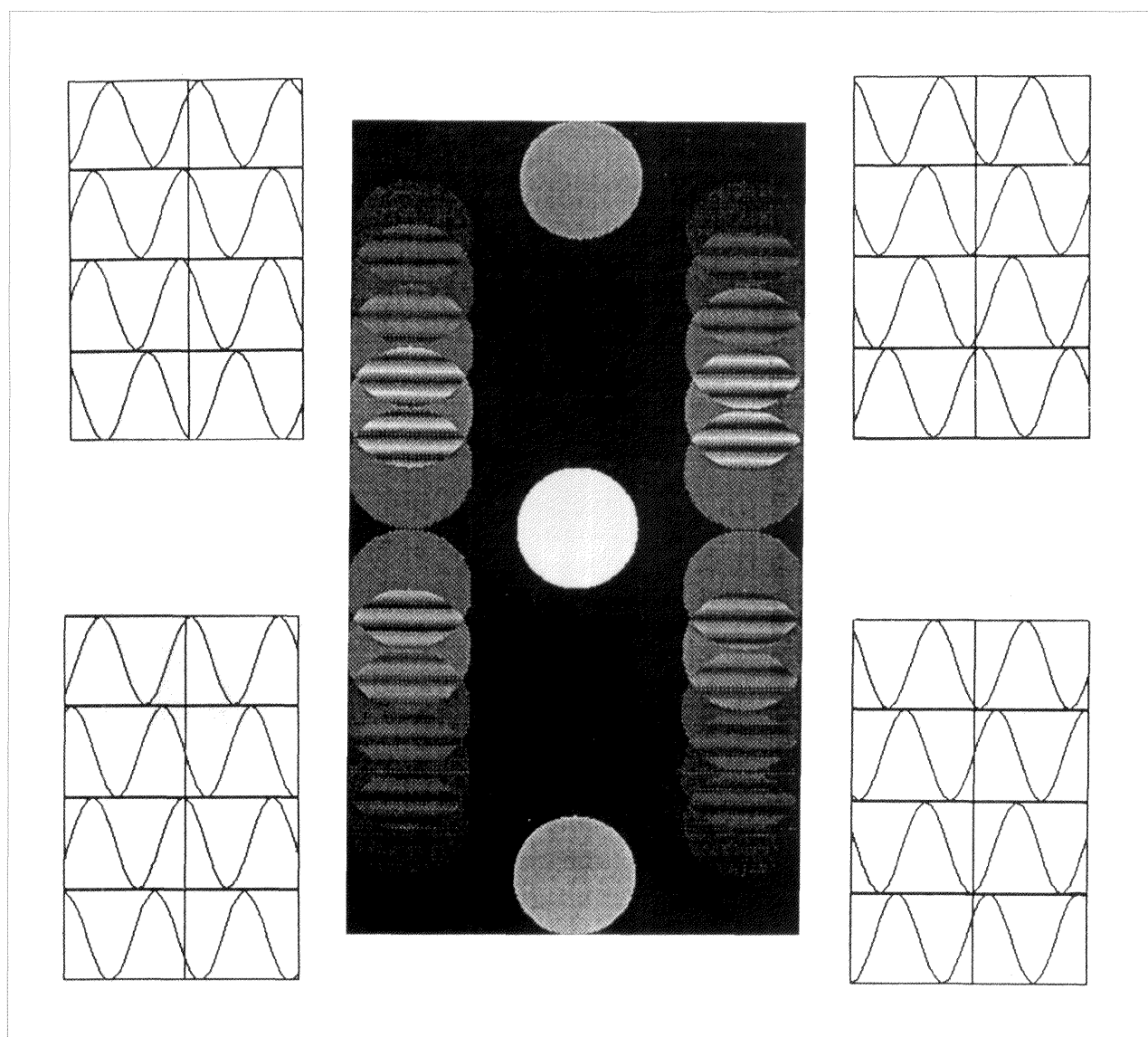


図8 <1120> 6H-SiCの加速電圧200 kVの回折図形の計算結果  
ディスクの重なり部分のうち強度の強い8つについて左から右にそのフリンジの位相を図示した。

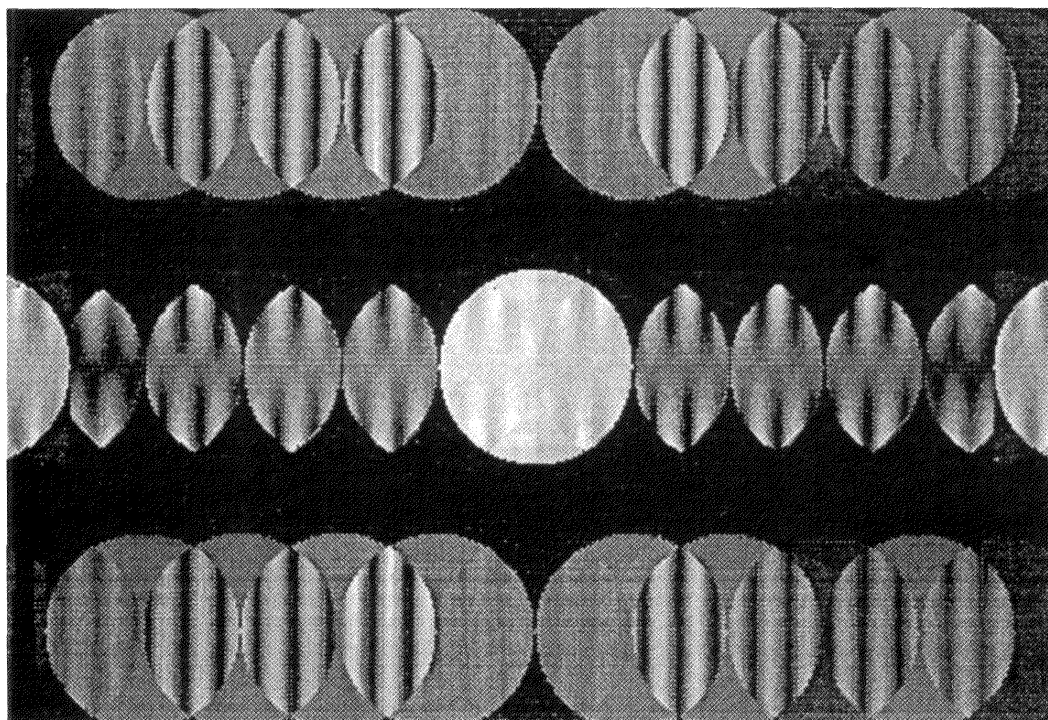


図9 図8と同様のシミュレーション結果  
ただし、試料膜厚は50 nmで、回折図形は90度回転させてあり、  
中央の回折図形は他の部分よりもコントラストを強調してある。

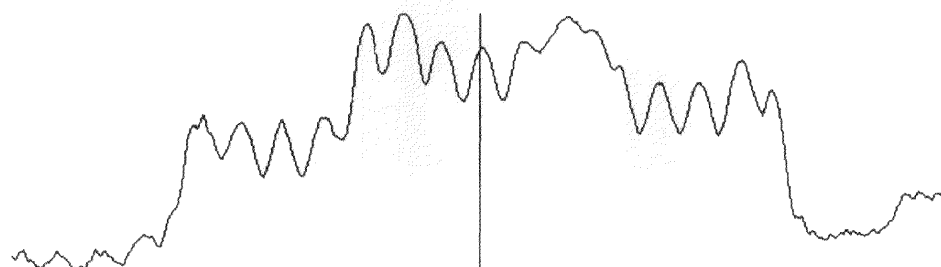
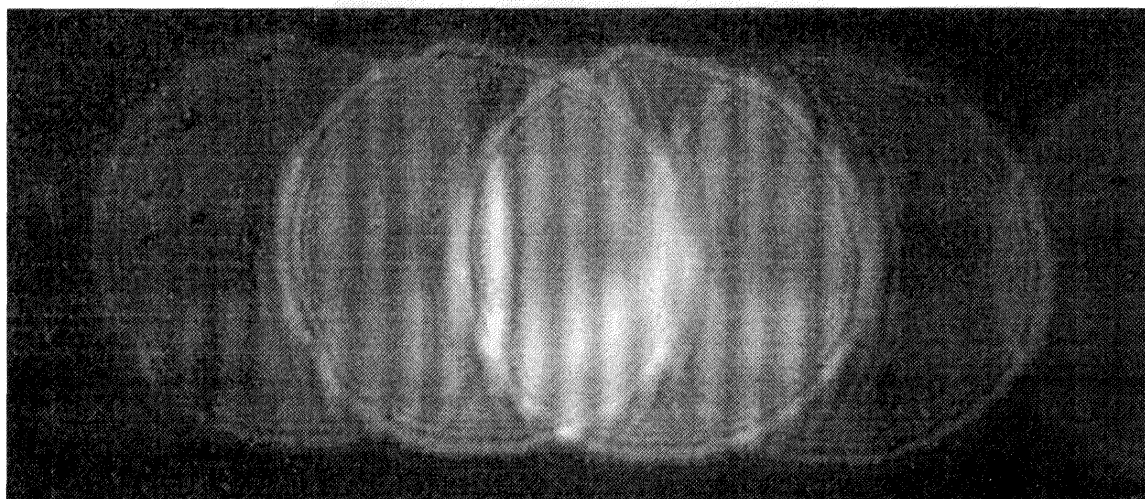


図10 デジタル化されたCBED図形と、その強度のラインプロファイル  
6H-SiCの  $\langle 1120 \rangle$  入射を加速電圧200 kVで観察した。

面と0次ラウエゾーンの分散面との交線であるから、互いの分散面の相対的な位相を解析できるであろう。HOLZリングの微細構造の位相が、分散面ごとに異なる実験結果もすでに得ている。

将来これらの研究を、転位、界面、粒界に広げて、このデフォーカスした電子線によるCBCED (out-of-focus CBCED) によって直接説明できればきわめて興味深い。収束したビーム径の空間分解能で、目的とする微小領域の原子構造についての新しい知見が得られる可能性がある。さらに、位相は電場や磁場に敏感であることから、これらの局所的な変化を検出できる。例えば、ある種の界面や転位は電界を持っているとされている。ピエゾ電気やひずみ、III-VもしくはII-VI半導体超格子は、局所的に大きな電場変化を持ち、磁気多層膜は大きな磁場変化がある。また試料の端はきわめて強い電場を持っている。これらの電場や磁場の変化には、長距離にわたった変化がある可能性もある。電子線ホログラフィーによる最近の実験では、これらの効果のいくつかがすでに報告されている<sup>6)</sup>。今後の実験によってCBCED法により何が検出できるかが明らかになるであろう。

## 6. 結 論

収束コヒーレント電子回折の実験をSiCの三つのポリタイプについて行った。少なくとも1 nmのユニットセルに対し、回折波の相対的な位相を重ねり合った系統反射の列に沿って決定できることがわかった。この方法が、どれだけ小さなユニットセルに適用できるかは今後の検討課題である。観察は0次ラウエゾーンと高次のラウエゾーンの両方

でなされるであろう。異なる系統反射の列の相対的な位相変化は、ポリタイプの映進面の有無を検出するのににも使える。回折図形の対称性は、従来のCBED図形のものから観察中の結晶の対称要素をさらに正確に表すものに変えられた。位相測定精度に関しても今後の検討課題である。それらが検討されれば、この方法が材料の結晶学的な評価や、欠陥や界面の評価、局所的な電場や磁場の検出の研究に用いられるかどうか明らかになるであろう。

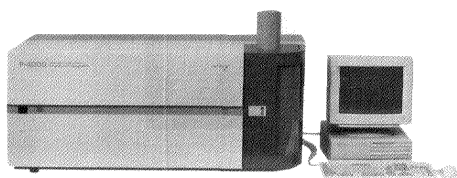
## 参考文献

- 1) Steeds J. W. & Vincent R. (1992) Ultramicroscopy (in the press).
- 2) Spence J. C. H. & Cowley J. M. (1978) Optik, 129.
- 3) Spence J. C. H. (1978) Acta Crystallographica **A34**, 112.
- 4) Vine W., Vincent R., Spellward P. & Steeds J. W. (1992) Ultramicroscopy (in the press).
- 5) Gjønnes J. & Moodie A. F. (1965) Acta Crystallographica **19**, 65.
- 6) Kawasaki T., Ru Q. X., Matsuda T. & Tonomura A. (1991) Institute of Physics Conference Series No. 119, Electron Microscopy and Analysis 1991, Institute of Physics, Bristol, Philadelphia & New York, 483.

## 新製品紹介

### P-4000形 ICP発光分析装置

P-4000形は国内で初めて採用した40 MHzトランジスタ化高周波電源と、明るい分光器の組み合わせにより、コンパクトな卓上形ながら高感度なICP発光分析装置です。河川・湖沼などの環境水や上下水中の重金属の測定はもちろ

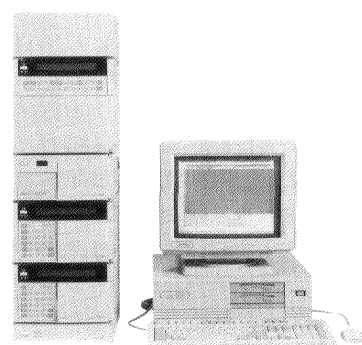


ん、材料・食品中の金属の測定などの一般分析にも広く対応します。操作の面でも世界標準のWindows\*を採用して、使いやすい、使って楽しい分析装置を目指しています。

プラズマの絵をマウスでクリックすると、プラズマが点火。そんな「楽しい」ICP発光分析装置が環境分析のシーンを変えます。

### 新形 液体クロマトグラフ 「L-7000シリーズ」

新形液体クロマトグラフL-7000シリーズが発売されました。このシリーズは、「品質」「性能」および「機能」を徹底的に追求した未来指向の液体クロマトグラフです。縦置きパイルアップ方式によって省スペースを実現、1本



のケーブルで接続するDラインコミュニケーション、最新のOS, WindowsNT\*を採用したHPLCマネージャータル性能の大幅アップ、保守点検から分析結果の報告までGLP/GMP対応機能の搭載など、種々の特長を持つ新デザインのHPLCです。

\* Windows, WindowsNT は、米国 Microsoft Corp.の商標です。

## Topics

### 第13回九州科学機器展 開催

第13回九州科学機器展が去る5月19日から21日までの3日間、福岡市・博多スターレーンにて開催された。本展示会は、隔年ごとに開催される九州・沖縄地区で最大の科学機器展である。入場者は1万3,000人であった。

現在、水道水、環境水の水質基準の改正および実施に伴い、高感度分析に対する要求がますます高まっている。

このような背景に、日立グループは「環境分析」をメインテーマにかかげ、ICP発光分析装置P-4000、水質分析用三次元四重極質量分析計M-7100をはじめ最新製品を展示した。

また、一緒に開催された「新製品新技術講演会」では三次元QMS M-7200の講演を行い、熱心な聴講者で盛況であった。(田中 取 記)

### 第14回ANALITICA'94 開催

去る4月18日から22日まで第14回ANALITICA'94が開催された。この展示会は2年に1回ミュンヘン市内メッセゲレンデで行われている。特長としては分析機器、実験機器の展示に加え、臨床検査領域まで幅が広がっている点である。また今回特にバイオテクノロジーおよび環境分析に関するものの展示が増加しており、カンファレンスでも多く取り上げられていた。

展示機器の中では、天然物や光学分割でのカラムを応用した反応と分離の組み合わせ機器が多く、また最近話題の多いキャピラリー電気泳動装置も出展数14社と増加していた。しかし期待の大きい糖鎖分析に関する報告、出展はなかった。新技術製品としては各種反応系の解析に有効な「表面プラズモン共鳴装置」が注目されていた。

(轟木 一義 記)



### 名古屋最新科学機器展 開催



4月20～24日にかけて名古屋吹上ホールで最新科学機器展が開催された。

展示企業が220社を超え、計測器分野の展示会では中部地区最大級の規模で、展示会入場者は、約2万3,000人と盛況であった。

今回日立グループでは、環境分析を中心に展示し、最新型ICPのP-4000、水質分析用GC/MSシステムM-7100などを展示した。特に、水質分析用GC/MSシステムは、多くの方に興味を持って

いただき、高感度分析の実力が評価されたようである。そのほか、新製品も多く、会期中、終日来場者でにぎわい、活況を呈した。(黒田 一寛 記)

### 日本電子顕微鏡学会 第50回学術講演会開催

日本電子顕微鏡学会第50回学術講演会が、東京・北区の「北とびあ」で5月25～27日の3日間、約800人の参加者を集めて開催された。論文発表は講演、学術展示合わせて約290件にのぼり、その内容も医学・生物学から電子デバイスへの応用まで多岐にわたっていた。また、第50回記念行事としてDr. S. J. Pennycook (ORNL, USA)をはじめ著名な海外研究者7人の招待講演が行われた。一方、併催の写真コンクールでは、応募作品24件の中から選出された入賞作品4件の中に日立応募作品が3件含まれ、その中の2件が5月25日付け毎日新聞夕刊にいち早く報道されるなど、その反響も大きかった。

(山田 満男 記)



## 解 説

## FIB(FB-2000/FB-4080)装置とその応用

## Focused Ion Beam Systems (FB-2000/FB-4080) and Their Application

石谷 亨\* 大西 毅\* 岩本 寛\* 小池 英巳\* 広瀬 博\* 坪井 秀樹\*\* 上野 武夫\*\*

(平成 6 年 4 月 15 日受理)

## 1. はじめに

FIB (Focused Ion Beam : 集束イオンビーム) とは、ビーム径を数マイクロメートル以下に絞った細いイオンビームのことで、(1) SIM (Scanning Ion Microscope : 走査イオン顕微鏡) による試料表面の像観察、(2) スパッタリング現象による局所加工、および(3) FIB誘起デポジションによる局所膜付けの三つのユニークな機能を持っている。そのため、最近、FIB技術の応用展開が種々の分野で、つまり(1) デバイスの断面加工・観察、(2) 透過電子顕微鏡や走査電子顕微鏡の試料前処理加工、(3) 配線の切断と接続によるデバイス修正、(4) マイクロマシニングなどの分野で行われている<sup>1)2)</sup>。一方、半導体デバイス分野では高密度化と大集積化が進行しており、デバイスの不良解析と製造プロセスの評価で、走査電子顕微鏡や透過電子顕微鏡を用いたデバイスの高分解能観察、およびそれらの解析結果の製造ラインへの早期フィードバックがますます重要になっている。

そこで当社では、デバイス・材料の断面加工・観察、および透過電子顕微鏡、走査電子顕微鏡用試料の前処理加工を主目的としたFIB装置 2 機種 (FB-2000/FB-4080) を開発した。両機種は同じ高性能FIB光学系を搭載しているが、対象試料のサイズが異なる。つまり、FB-2000は小さなチップを、一方、FB-4080は最大 8 インチウェーハを対象にしている。両機種の外観をそれぞれ図 1、2 に示す。ここでは初めに加工応用例について述べ、次に装置の特徴について説明する。

## 2. 断面加工・観察

デバイス・材料の断面加工・観察は、通常、以下の手順で行う。(1) 加工領域の設定：所望加工位置の試料表面SIM像をCRT上に表示し、その上に加工領域を設定する。(2) FIB加工：大小のビーム径を順次用いて、それぞれ粗加工、仕上げ加工を行う。(3) 加工断面のSIM像観察：試料を傾斜し、加工断面をごく細いFIBを用いてSIM像観察をする。

断面加工・観察例としてDRAM素子のトレンチ位置での加工断面SIM像を図 3 に示す。そこには断面形状構造が明瞭(りょう)に観察されている。また、加工位置精度を劣化させる断面切り口のだれは大きくないことがわかる(試料表面にはスパッタ損傷から保護する金属膜を付けていない)。

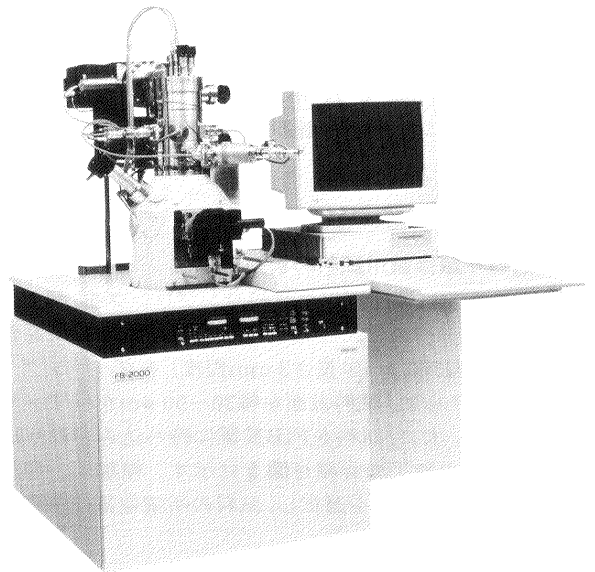


図 1 FB-2000の外観

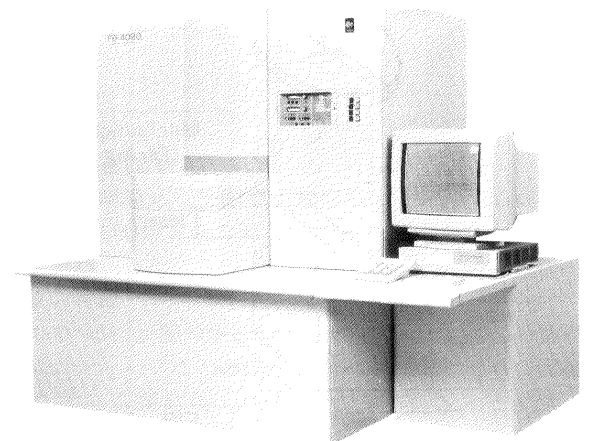


図 2 FB-4080の外観

これはFIB分布のすそ広がり小さいこと、およびFIBの電流密度が高いこと、つまりFIBが強く、かつシャープであることを示している。代表的加工時間は大きさ $8\mu\text{m}$ 角の場合、約10～15分である。このFIB断面加工法はへき開が困難な試料、例えばガラスやセラミックス基板の試料に対しては他に有効な手法がなく、特に有効である。

\* 株式会社日立製作所 計測機事業部

\*\* 日立計測エンジニアリング株式会社

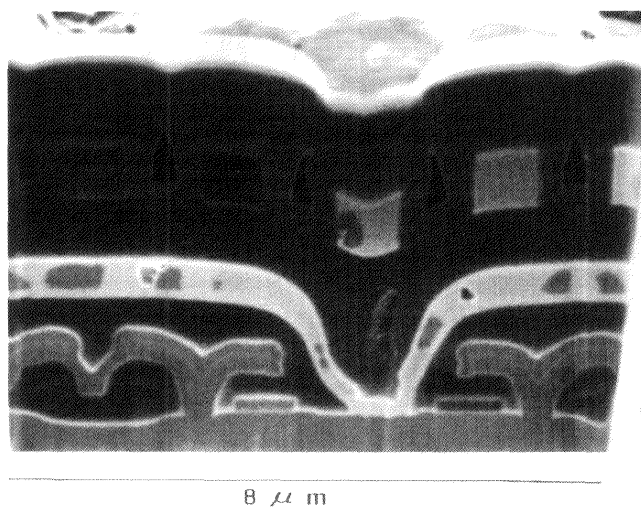


図3 DRAM素子における加工断面のSIM像観察（表面には金属デポ膜なし）

### 3. 透過電子顕微鏡用試料の前処理加工

FIBによる前処理加工用の試料サンプリングを、図4を用いて説明する。初めに、ウェーハ基板から所望場所を含む小さな領域（幅500 μm×長さ3 mm程度）をダイシングソーで切り出し、さらに、試料表面を幅30～50 μmを残すメサ形状に加工する。次に、試料をFIB装置に持ち込み薄膜形成加工を行う。この加工の詳細を図5に示す。粗加工、中加工と順に径の小さいFIBを選択し、試料の所望位置に薄膜を残

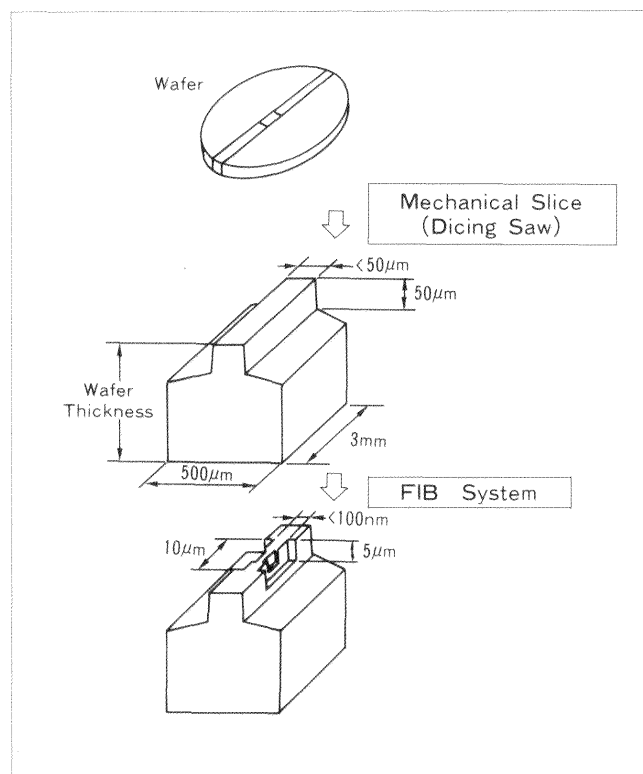


図4 透過電子顕微鏡用試料作製の概略説明図

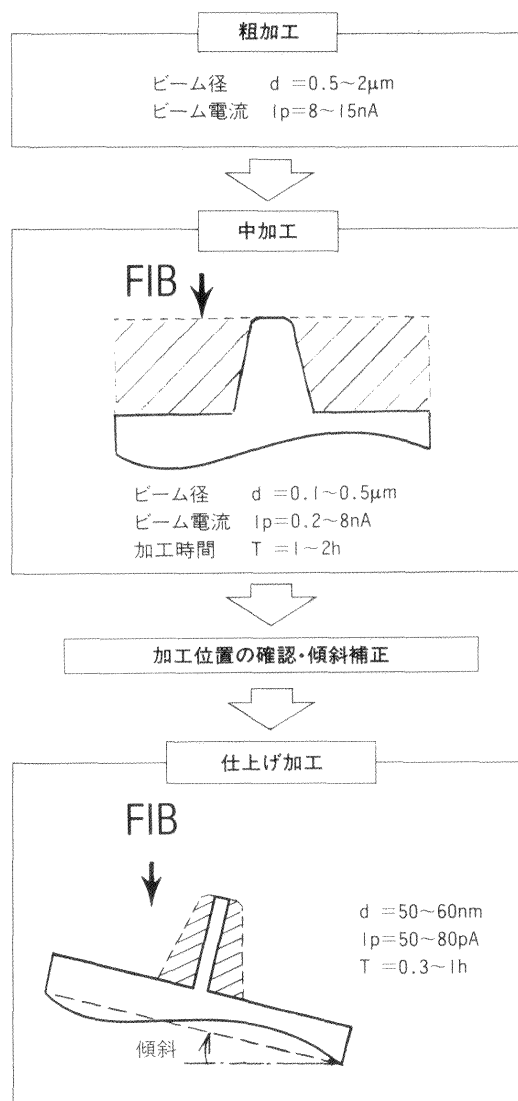


図5 FIB加工手順の概略説明図

すようにその両側を背中合わせに2か所断面加工する。中加工では膜厚を0.2～0.3 μmまで薄くする。このときの膜壁はスパッタリング特性のため、FIB照射方向に対し数度傾斜している<sup>2)</sup>。仕上げ加工ではさらに細いFIBを用いて試料をプラスマイナス数度傾斜して膜厚を一様化すると同時に、0.1 μm以下まで薄膜化する<sup>3)</sup>。FIBの代表的全加工時間は約1.5～3時間である。

この方法の最大の特徴は、機械研磨とイオンミリングを組み合わせた従来法と比べて、(1) 試料の所望位置での膜壁形成ができること、(2) 従来法が前処理加工に数日を要したのと比べて、非常に高効率であること、および(3) スパッタ収率差の大きい材料から成る層構造試料に対しても膜壁形成が可能なこと<sup>4)</sup>、である。今後、透過電子顕微鏡観察対象の試料範囲の大幅な拡張が期待できる。

次に、FIBによって前処理加工したDRAMの透過電子顕微鏡(300 kV; H-9000NAR)による観察例<sup>5)</sup>を図6に示す。明瞭な断面構造が見られることはもちろん、膜壁トッ

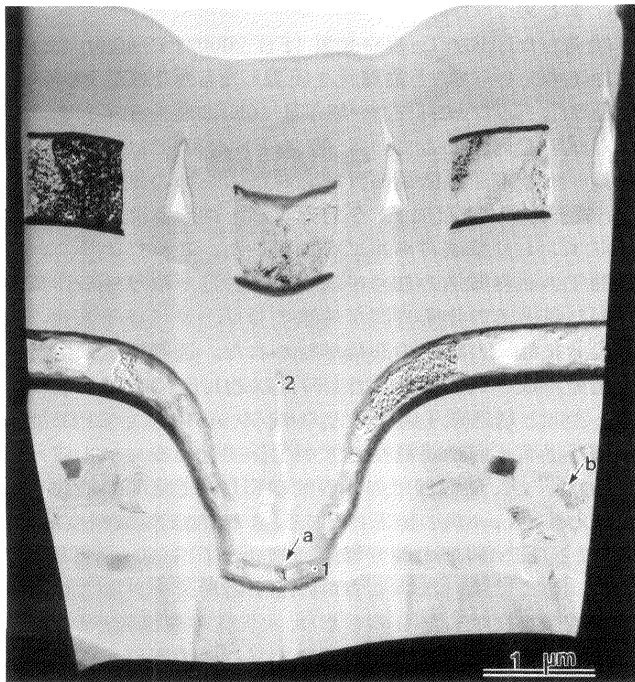


図6 FIB作製したDRAM試料の透過電子顕微鏡観察像  
(膜厚：60 nm，透過電子顕微鏡 [300 kV]：H-9000NAR)

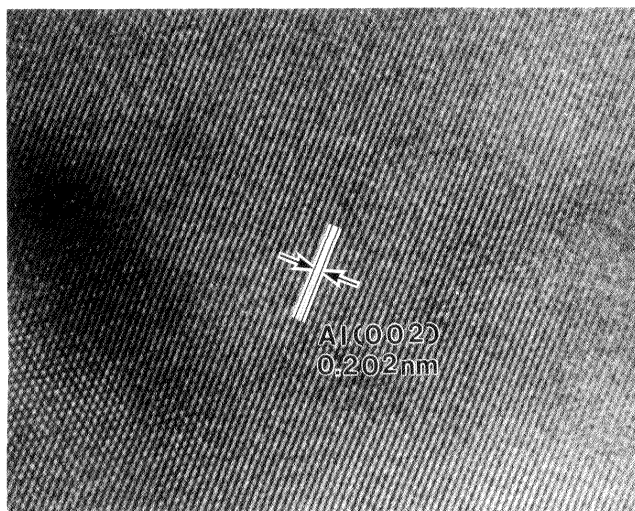


図7 DRAM試料におけるAl配線部(図6の矢印a部)の高分解能透過電子顕微鏡像

ブ部はスパッタ損傷をあまり受けていないこと、および一様な膜厚(約60 nm)に加工されていることがわかる。図7はAl配線(図6中の点a)の高分解能像であり、(002)面の格子像が見られる。さらに、図8に図6中の点1と2からのEDX分析データを示す。点1から強いAlピークと弱いGaとSiピークが観測されている。一方、点2のpoly-Siの空隙(げき)部からは強いSiピークと、弱いGaとOピークが観測されている。Gaピークは打ち込まれたFIBイオン材料からのものであり、点1からのSiピークは近くに位置するSi基板

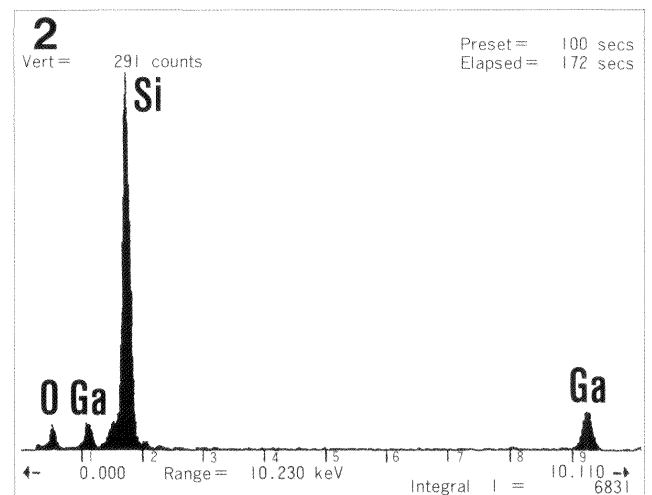
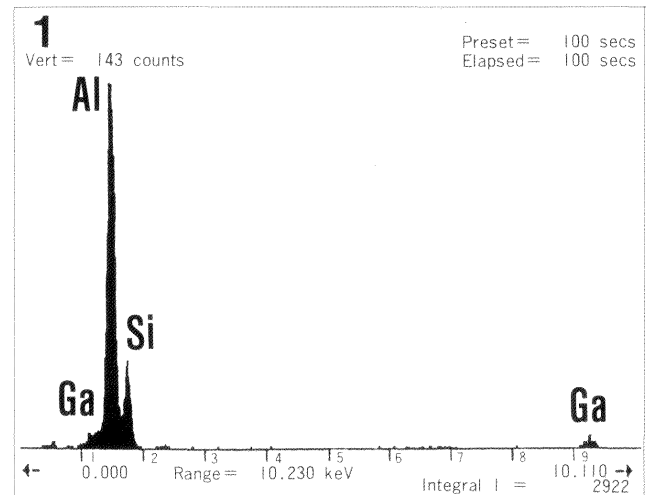


図8 加工断面内の代表的場所(図6の点1, 2)でのEDX分析データ  
(電子ビーム径：10 nm)

からの迷い込み信号である。以上、この加工法によって所望位置での断面透過電子顕微鏡観察や原子レベルの高分解能観察、およびOのような軽元素も含めEDX分析が実現できることがわかった。

#### 4. 装置の特徴

FB-2000/4080装置の主な特徴を表1に示す。第一の特徴は、加工のシャープさと高速化にある。加工ビームの電流密度は全ビーム径範囲( $d=0.03\sim1\mu\text{m}$ )で $2\text{A}/\text{cm}^2$ 以上を、特に $0.1\mu\text{m}$ 径近傍では $10\text{A}/\text{cm}^2$ 以上を達成している。30 kV Ga-FIBでのSi試料の加工効率 $0.2\sim0.8\mu\text{m}^3/\text{nA}\cdot\text{s}$ である。特に、加工の高速化は単に加工スループットを高めるだけでなく、加工のシャープさにも貢献するので重要である。つまり、FIBや試料ステージの位置ドリフトが大きくなる以前に加工を完了させるのである。この装置の代表的な加工位置精度は $0.1\mu\text{m}$ 以下である。

SIM観察での像分解能は25 nm以下(10 nm可能)であり、さらなる高分解能観察は透過電子顕微鏡、走査電子顕微鏡で行う。FB-2000は特にこのFIBと透過電子顕微鏡、走査電

表1 FB-2000/4080装置の主な特徴

| 項 目                         | 特 徴                                                                         |
|-----------------------------|-----------------------------------------------------------------------------|
| 1. イオンビーム                   | 30kV(標準) ガリウム (Ga)-FIB                                                      |
| 2. 断面加工の位置精度                | $\leq 100\text{nm}$                                                         |
| 3. SIMの像分解能                 | $\leq 25\text{nm}$ (10nm可能)                                                 |
| 4. 加工速度                     | $3\sim 10\mu\text{m}^3/\text{s}$<br>(Si試料, FIB: $\phi 1\mu\text{m}$ , 13nA) |
| 5. FIBの最大電流密度               | $\geq 10\text{A}/\text{cm}^2$                                               |
| 6. FIBと透過電子顕微鏡・走査電子顕微鏡とのリンク | 試料ホルダの共通化 (FB-2000)                                                         |
| 7. 簡易操作                     | (1) カラムの自動制御<br>(2) 連続加工<br>(3) 実時間加工モニタ (SIM像)                             |

子顕微鏡とのリンクを配慮したもので、両装置に共通のサイドエントリ型試料ホルダを採用している\*1。これにより、両装置間の試料搬送はホルダ単位で可能となり、もはや試料のホルダや透過電子顕微鏡用メッシュへの取り付け・取り外し作業の煩わしさはなくなり、その作業時間も不要となった。オペレーターはその作業時での試料の破損や紛失に対する緊張から開放される。また、このリンクは透過電子顕微鏡観察後のFIB追加工を容易とするものである。これらの総合結果、ダイシングソウですでに切り出し済みの試料であれば、FIB加工から透過電子顕微鏡観察までを1日で終わらせることも可能となった。

第二の特徴は、高い操作性である。前もって調整・設定、登録した種々のビーム径のFIBは、登録FIB名だけで呼び出せる自動制御カラムを採用している。また、複数パターンの加工は、個々のパターンごとの加工条件と加工順序を前もってプログラムしておくことにより、これらの連続加工ができる。さらに、加工はSIM像による実時間モニタが可能であり、これを加工終点モニタに利用することもできる。

※) サイドエントリ型ステージのほか、最大4インチウェーハが載せられるユーセントリックステージも取り付けられる。ただし、これらのステージの同時取り付けはできない。

## 5. まとめ

開発したFIB加工・観察装置 (FB-2000/FB-4080) は、特に加工のシャープさと高速化を実現したものである。FB-2000は小さなチップ試料を、一方、FB-4080は最大8インチウェーハ試料を対象としている。特に、FB-2000では透過電子顕微鏡・走査電子顕微鏡高分解能観察のための試料前処理加工 (膜壁形成・断面加工) を対象とし、両装置間で共通のサイドエントリ型試料ホルダを採用した。これにより、両装置間での試料搬送のための試料取り付け・取り外し作業の煩わしさとその作業時間が皆無となり、オペレーターの大幅な負担軽減と時間の節約が行われた。透過電子顕微鏡用の膜壁形成の代表的FIB加工時間は約1.5~3時間であり、FB-2000と透過電子顕微鏡とのリンクによってFIB加工から透過電子顕微鏡観察までが1日で行えるレベルに入ってきた。一方、断面加工の代表的なFIB加工時間は約10~15分 (大きさ8 $\mu\text{m}$ 角の加工) である。また、加工位置精度は0.1 $\mu\text{m}$ 以下、SIM観察の像分解能は25nm以下 (10nm可能) である。ここで述べたいくつかの加工応用データはこれらの装置特徴を反映したものであり、次世代の高機能デバイス・材料の不良解析やプロセス評価で、この装置の大きな貢献が期待される。

加工対象試料に関しては、特に、へき開できないガラス、セラミックス基板などの試料に対してはFIB加工法のほかに有効な手法がなく、特に有効である。また、半導体、金属、セラミックスなどばかりでなく、軟質・難加工材料であるポリマーや生体試料などにもその応用展開が期待されている。

## 参考文献

- 1) K. Nikawa : J. Vac. Sci. Technol. B9, 2566 (1991)
- 2) T. Ishitani, et al. : J. Vac. Sci. Technol. B9, 2633 (1991)
- 3) 石谷, 他: 特開 平4-62748
- 4) 坂, 他: 日本電子顕微鏡学会第50回学術講演会予稿集 (1994) P.54
- 5) 矢口, 他: Technical Data No. 65 (HITACHI, 1993)

私のアイディア・工夫・失敗談

## Lounge

## 分析データを味わう

分析というと、とにかく装置を用いて測定することだけを考えやすい。しかし、実際にデバイスの故障解析や反応物の分析を行うときは、測定の前後のプロセスに相当の時間を費やす場合が多い。それが前処理と後処理である。透過電子顕微鏡の分野では、観察目的の場所を薄片化するという試料作製（前処理）が測定前の大切な準備作業になっている。したがって、装置を導入しても試料作製のノウハウを習得しないと測定ができないというケースが多い。最近FIB（イオンビームを試料に照射して薄片を切り出す）装置が商品化され、試料作製もかなり容易になりつつある。

最近私が関心を持っているのは、後処理である。すなわち、測定したデータから、できるだけ多くの知見を得るプロセスである。いろいろ前処理をくふうし、また高価な高性能装置を駆使して測定して得られたデータである。データを多面から検討し、咀嚼（そしゃく）して、そこに含まれている情報を味わい尽くせば、その苦労や費用以上の価値の分析結果が得られる。特に電子顕微鏡では、試料作製や撮影技術が名人芸に依存していたこともあり、データ処理についてもとくに経験者の勘に頼っていた。彼らは格子像写真を目を細めたり、斜めにしてアナログ的に画像処理をしたりして解析してきた。最近のパーソナルコンピュータのダウンサイジングと演算能力の向上は目覚ましいものがある。従来、名人が行っていた後処理のうち代表的な画像処理は、コンピュータを活用するとかなり容易に早くできるようになる。いくつもの解析手法や、結晶、材料などに関するデータベースが組み込まれているコン

ピュータの活用は、分析後処理の重要な手段になっていくと思っている。

コンピュータを用いて画像処理を行った例を図1に示す。材料は最近磁性材として注目されているFeTaC膜で、その格子像を示す。図1-0は処理前の像で、周期の異なる格子像が認められる。この像のフーリエ変換像（電子回折図形）に対応、図1-1から格子間隔を測定して、X線回折データと照合した結果、2.6、2.2、2.0 Å間隔の格子は、TaCの(111)面、(200)面、Feの(110)面にそれぞれ一致することが解析できた。次に、フーリエ変換像中の特定の周期（格子間隔）だけを残し逆フーリエ変換を実

行すると、特定物質または結晶面の分布を像として見ることができる。図1-3、1-4はおおのTaC (111) とFe (200) を選別した像である。この結果からTaC (111) とFe (110) 粒子の大きさと分布状態を明確に解析することができる。

（日立計測エンジニアリング

永田文男）

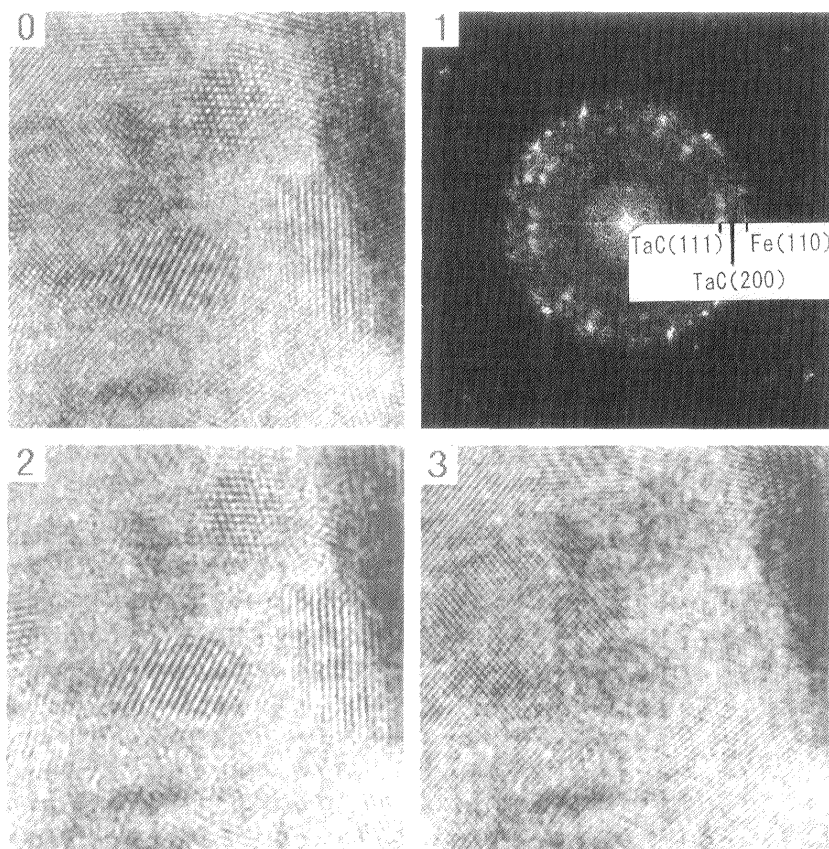
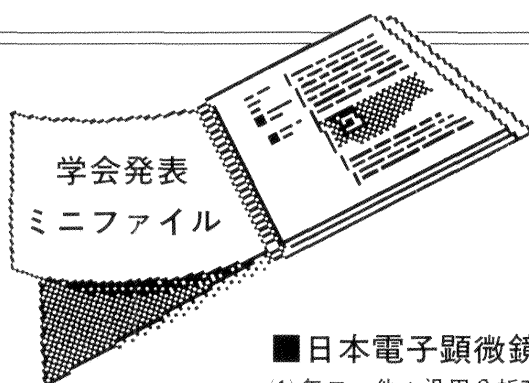


図1 格子像の画像処理例



## ■日本電子顕微鏡学会第50回学術講演会 (5/25~27, 北とぴあ 東京)

(1) 矢口, 他: 汎用分析TEMを用いたガス反応観察と分析

汎用の分析電子顕微鏡の試料予備排気室内で直接加熱試料ホルダを用いてシリコンを約1,400℃に加熱し, ガス反応によりウィスカ (シリコンタングステンオキシド) を成長させてその原子配列を観察することに成功した。

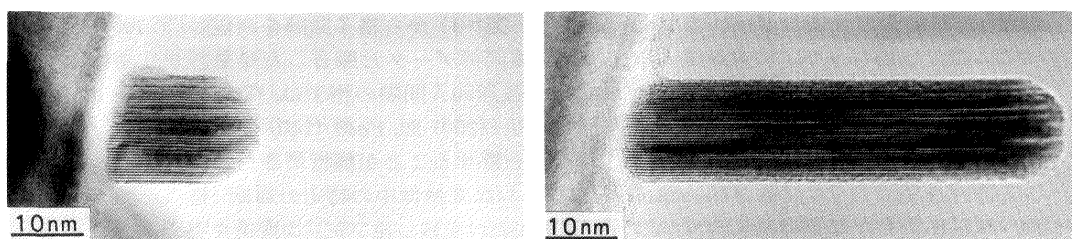


図1 反応時間30秒 (左) および40秒 (右) におけるウィスカ成長の様子

(2) 中川, 他: 高温高分解能SEM法の検討

S-5000形SEMに直接加熱方式試料ホルダを装着して試料室内で金を約1,000℃に加熱して融解させ, その後温度をわずかに変化させることにより試料表面の液相-固相界面における数十nmオーダーのダイナミックな形態変化を初めてとらえた。

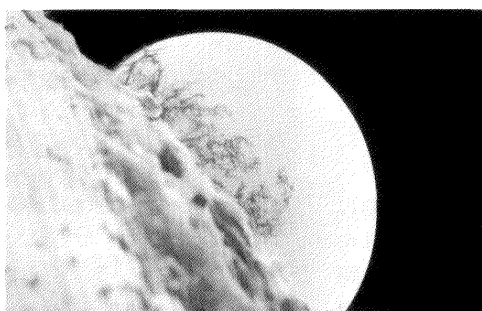


図2 金を約1,000℃に加熱して融解させた状態

- (3) 植木, 他: FETEMによる組成像観察とその応用
- (4) 上野, 他: 高温高分解能電子顕微鏡によるSiC結晶成長の観察
- (5) 田盛, 他: スロースキャンCCD-TVを用いた天然高分子キチンの電子顕微鏡観察
- (6) 多持, 他: 二次電子検出法による像情報の違い
- (7) 山田, 他: ナトリウムイオン導電体 $\text{Na}_4\text{Zr}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$ のSEM観察
- (8) 森本, 他: クールステージの開発とその応用
- (9) 後藤, 他: 恐竜の歯と骨をSEMで探る
- (10) 金村, 他: 分析電子顕微鏡による化合物半導体の定量分析
- (11) 佐藤, 他: FETEMによるEDX分析—試料とEDX検出器の相対位置—
- (12) 小池, 他: TEM試料作成用集束イオンビーム加工装置の開発

## ■第55回分析化学討論会（6/11～12，富山大学）

### (1) 山本，他：環境水中のSb分析におけるマトリックス修飾剤の検討

環境基準に要監視項目としてSbがあらたに加えられた。原子吸光用のマトリックス修飾剤としてPdが多用されているがSbの測定には効果的でない。その理由を金属の相状態図から解明し修飾剤としてAgが有効であることを見つけた。

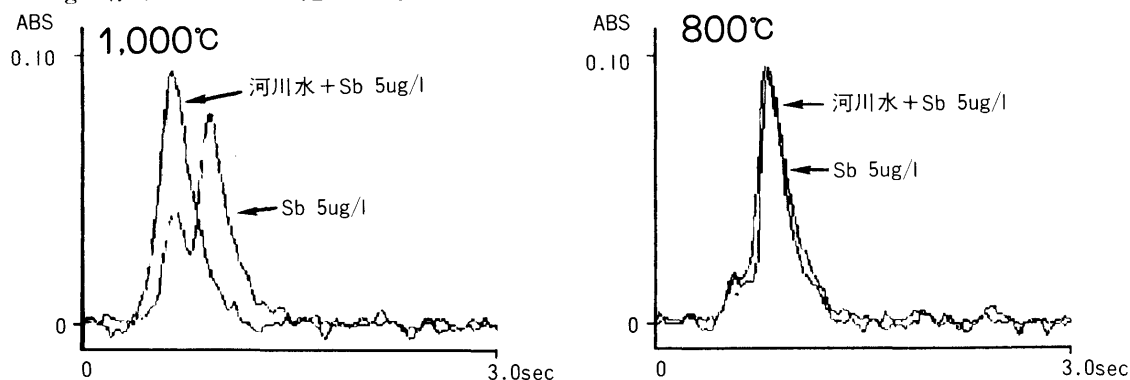


図3 マトリックス修飾剤による吸収ピークプロファイルの相違（左：Pd添加，右：Ag添加）

### (2) 白崎，他：MIP-MSを用いた頭髮中微量元素のプロファイリング

頭髮中の微量元素は生活の履歴を知る指標として注目され分析ニーズが高まっている。このためには、多元素を一斉分析する必要があるが従来の分析法ではAs, Seの精度が不十分であった。これを解決するためMIP-MS法を試みた。干渉分子イオンの生成について検討を加えて最適分析条件を設定し，好結果を得た。表1に1例を示す。

表1 NIES No.5頭髮試料の分析結果と保証値

|    | 本 法 ( $\mu\text{g/g}$ ) | 保 証 値 ( $\mu\text{g/g}$ ) |
|----|-------------------------|---------------------------|
| As | $0.11 \pm 0.01$         | —                         |
| Se | $1.43 \pm 0.05$         | (1.4)                     |
| Cd | $0.20 \pm 0.01$         | $0.20 \pm 0.03$           |
| Pb | $6.34 \pm 0.06$         | (6.0)                     |

### (3) 宮川，他：蛍光トレーサーを用いた油残渣（さ）検出法の検討

### (4) 平野，他：高温原子吸光法における励起干渉について

### (5) 松井，他：環境分析に適したICP発光分析システムと新水質基準への適用例

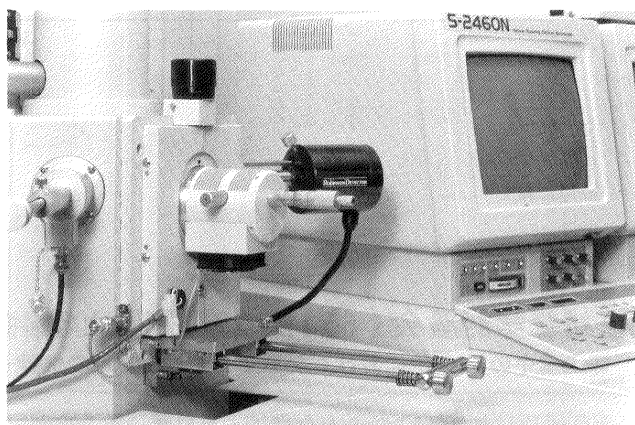
### (6) 高田，他：CE/MSによる脳機能関連物質の分析

## 新製品紹介

### ナチュラルSEM用 「クールステージ」 を発売

日立製作所は、ナチュラルSEM用に、水分を多く含んだ試料や熱に弱い試料がそのままの状態でも長時間観察できるステージ「クールステージ」を開発し、発売しました。

このステージは、ステージ温度を0℃前後に冷却することにより、水分の蒸発を抑えたもので、食品、薬剤などのバイオ分野をはじめ、熱によって変形



S-2460Nに装着されたクールステージ

しやすい素材のありのままの観察など、幅広い分野での応用が期待されます。

なお、「クールステージ」を搭載した

ナチュラルSEMを「チルドSEM」と呼んでいます。

## 日製産業株式会社

北海道支店 電話 札幌(011)221-7241  
東北支店 電話 仙台(022)264-2211  
筑波支店 電話 土浦(0298)23-7391  
北関東営業所 電話 大宮(048)653-2341  
西関東営業所 電話 八王子(0426)43-0080  
千葉営業所 電話 千葉(043)247-4151

本社 電話 東京(03)3504-7211  
横浜支店 電話 横浜(045)451-5151  
厚木営業所 電話 厚木(0462)96-6831  
新潟営業所 電話 新潟(025)241-3011  
北陸営業所 電話 富山(0764)24-3386  
豊田営業所 電話 豊田(0565)28-5191  
中部支店 電話 名古屋(052)583-5841

京都営業所 電話 京都(075)241-1591  
関西支店 電話 大阪(06)366-2551  
四国営業所 電話 高松(0878)62-3391  
中国支店 電話 広島(082)221-4514  
九州支店 電話 福岡(092)721-3501  
沖縄出張所 電話 那覇(0988)78-1311

## 株式会社 日立製作所

東京(03)3212-1111(大代)

### <編集後記>

- 今回は巻頭言に名古屋大学工学部教授の坂公恭先生に教育用TEM(透過電子顕微鏡)の必要性をユーザーの立場から切々と説いていただきました。現在世間で憂慮されている学生の理系離れに歯止めを掛ける最良の方法として中学校にSEMを高等学校にTEMを設置することを提案されており、ぜひ実現したいものです。
- イギリスのブリストル大学J.W.Steedsの『取束コヒーレント電子回折の実験』と題する論文を日立研究所の本本浩司氏に翻訳を依頼し、報文として掲載しました。実験には日立HF-2000形FE-TEMを使用した大変興味ある論文ですので、ご満足いただけるものと確信しております。

- 本ニュースに関するお問い合わせは、下記、または、日製産業株式会社の上記各事業所へご連絡ください。

○日立計測エンジニアリング株式会社  
テクノロジーサーチセンター  
〒312 茨城県勝田市市毛882番地  
電話 勝田(0292)73-2111(代)

○日製産業株式会社  
科学システム販売促進部  
〒105 東京都港区西新橋1-24-14  
電話 東京(03)3504-7811(ダイヤル)  
FAX (03)3504-7756

HITACHI  
SCIENTIFIC INSTRUMENT NEWS  
1994 VOL.37 NO.1

発行 平成6年9月20日  
発行人 本川 忠  
編集人 塚田 勝男  
発行所 株式会社 日立製作所 計測器事業部  
科学システム本部技術部  
〒100 東京都千代田区丸の内1-5-1(新丸ビル)  
電話 東京(03)3214-3122(直通)  
印刷所 日立印刷株式会社