

## 低真空 SEM での信号検出

## Signal Detection in Low Vacuum Scanning Electron Microscopy

中村 美樹<sup>a</sup>, Milos Toth<sup>b</sup>

Miki Nakamura and Milos Toth

<sup>a</sup> 日本エフイーアイ株式会社<sup>b</sup> FEI Company

**要旨** 近年における低真空走査型電子顕微鏡（低真空 SEM）観察の進歩により、絶縁試料の高分解能二次電子（SE）像の観察、1000 Pa より高いガス圧下での SE 像の観察、および含水物質や液体物質の SE 像や走査透過電子顕微鏡（STEM）像の観察が可能になった。本稿では、従来の低真空 SEM のアプリケーションの幅を広げる新しい検出手法の発展について、フォトリソグラフィックマスク、ナノワイヤ、エアロゲル、人工雪、およびインフルエンザウイルスなどといった物質系の最先端画像を用いて議論し、説明する。

キーワード：低真空 SEM, WET STEM, 高分解能

## 1. はじめに

試料チャンパー内をガス雰囲気中に保持できる低真空走査型電子顕微鏡（低真空 SEM）<sup>1)</sup> は、無蒸着の絶縁体試料、真空中で不安定な試料、および in-situ で試料の動的変化プロセスの観察を行う際などに使用される。しかしながら、ガス雰囲気下における SEM 像の観察は二つの理由から容易ではない。一つ目の理由は、電子のガス分子への衝突により、試料に入射する一次ビーム内の電子量が減少したり、試料から放出される電子が検出器に到達しにくくなることである。これらを抑えるために、真空制限アパーチャー（PLA: Pressure Limited Aperture）を使用する。PLA は、ガス雰囲気下のビーム通過距離（BGPL: Beam Gas Path Length）を短くし、残留ガスとの衝突から起こるビーム散乱を低減するのに有効である。二つ目の理由はガス雰囲気では、二次電子検出に一般的に使用される Everhart-Thornley 検出器を使用すると、検出器にキロボルト台の高電圧バイアスをかけているため放電を起こす。よって、低真空 SEM の二次電子検出器に二次電子信号<sup>1,3,4)</sup> を保持または増倍させるための最適な電圧（100 V/cm 台）を印加し、ガスイオン化カスケード増幅機構と呼ばれる方法を利用して観察を行う。

低真空 SEM のアプリケーションは、それぞれ専用の信号検出手法を必要とする。ここでは、絶縁体試料の超高分解能二次電子像観察<sup>5,6)</sup>、含水試料や液体試料の SE 像や走査透過電子顕微鏡（STEM）像の観察<sup>7)</sup>、および 1000 Pa より高い

ガス圧下での二次電子像の観察<sup>8)</sup> を中心に、最新の事項について概観する。

## 2. 低真空観察の実現

低真空 SEM では一次ビームが残留ガスと衝突し、ビームの散乱ならびに電流量の減衰が起こるが、PLA の使用により、それらを抑制することが可能である。PLA は図 1 (a) の試料室内を示した CCD 画像のように、ユニカルレンズの直下に装着する。これによりガス雰囲気下の BGPL を短くすることができる（図 1 (b)）。このため、残留ガスとの衝突から起こるビーム散乱を最小にし、空間分解能の高い X 線分析を可能にすると同時に、低加速電圧での SEM 画質を改善する効果がある。

次に、ガス雰囲気下においても効率よく二次電子信号を取得するのに用いられるガスイオン化カスケード増幅（低真空二次電子検出器：LFD (Large Field Detector) 検出器）の概念を説明する（図 2）。試料表面の上方に検出器を配置し、検出器側に正あるいはサンプル側に負電圧を印加することによって、試料から発生した二次電子を検出器に向けて加速する。二次電子が検出器に到達する間に、二次電子はガス分子と衝突し、衝突されたガス分子はイオン化し、電子とプラスイオンに分離する。ここで発生した電子は正電位の検出器に引き付けられるため、さらにガス分子との衝突が起きる。この連鎖的な機構により電子がカスケード式に増幅されると同時に<sup>4)</sup>、二次電子は最大 1 千倍まで増倍する。また、発生したプラスイオンは絶縁体試料表面の帯電した部分に引き付けられる。この際、試料室内の残留ガス量を真空度制御することで、試料の帯電を中和させたり、帯電をおこしたり自由に操作でき、無蒸着試料の SEM 像観察や電位差コントラスト

<sup>a</sup> 〒 108-0075 東京都港区港南 2-13-34 NSS-II ビル 1 階  
TEL: 03-3740-5161; FAX: 03-3740-5162  
2008 年 6 月 2 日受付

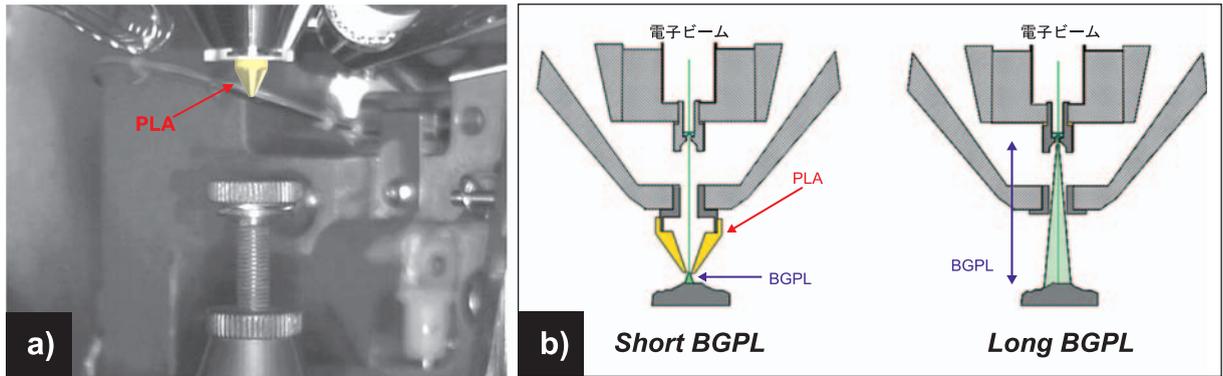


図1 (a) 試料チャンバー内の CCD 画像, および (b) 真空制御アパーチャー (PLA) の有無におけるビーム到達距離 (BGPL) の差異の概略図.

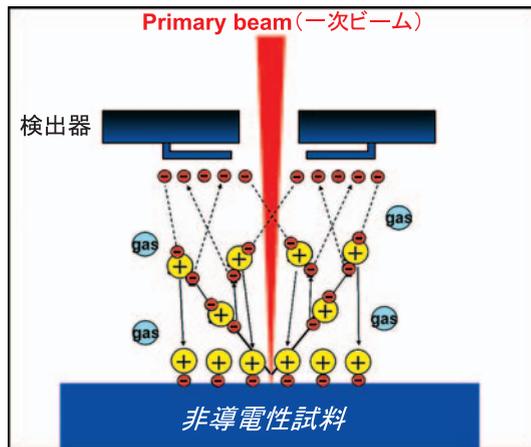


図2 低真空二次電子 (LFD) 検出器の概略図. 一次ビームと残留ガスの衝突により発生した電子は二次電子信号を増倍する (ガスイオン化カスケード増幅機構). また, 同時に発生したプラスイオンは, 絶縁体試料表面の帯電の抑制にはたらく.

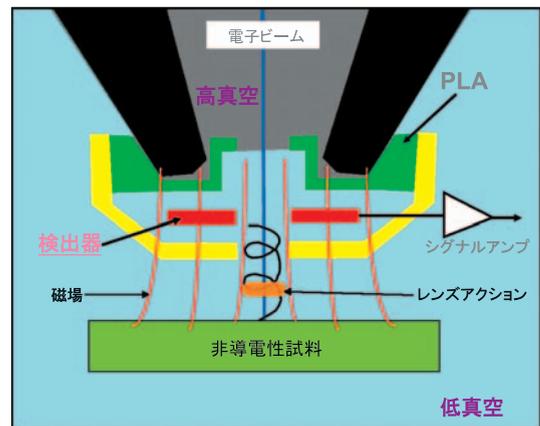


図3 FEI 社製 Helix 検出器の概略図.

トの観察を可能にする<sup>1,9)</sup>.

### 3. 低真空 SEM の超高分解能観察

低真空 SEM で 1 nm といった超高分解能観察を実現するには, 上述の PLA やガスイオン化カスケード増幅機構の技術の他に FE (Field Emission) 電子銃とヘキサレンズと呼ばれる強励磁対物レンズを用いる必要がある. ヘキサレンズは高分解能観察時には試料チャンバー内に磁場を発生させ, その磁場内に試料を配置するため, 作動距離を短くし, レンズの取差を小さくすることができる. そのため高分解能観察に適したレンズ系であると言える. これまで, 低真空でこれらの超高分解能レンズの適用は困難とされてきたが, それを可能にするのが図3に示す FEI 社の Helix 検出器である. ヘキサレンズの高分解能観察では, レンズ磁場内を二次電子が検出器までコイル状に巻き上げられて進むため, ガス雰囲気中の試料から検出器までの経路長が大幅に伸長し, それによって超高分解能の二次電子像観察に必要な低真空下でのガスカスケード増幅を可能にする. 図4に, 高真空下では帯電現

象により高分解能 SEM 観察が困難な材料を Helix 検出器にて取得した SE 像を示す. 図4(a)にはフォトリソグラフィックマスク上の電的に絶縁させた Cr アイランド<sup>6)</sup>を, 図4(b)では水晶基板上の炭素質ナノワイヤ間の 4 nm 幅構造<sup>10)</sup>を, 図4(c)および(d)では  $\alpha$ -AlOOH エアロゲル<sup>11)</sup> およびフラクタル状の孔径を持つ絶縁体の2つの領域を示す.

### 4. 極低真空下での観察手法

上述の LFD 検出器や Helix 検出器は通常 200 Pa 以下で使用される. それよりも試料室内の圧力を上げて観察を行う場合, これらの低真空 SEM 検出器では高い SN 比が得られないため, 大電流ビームの使用が必要になり, 分解能の低下および試料損傷に繋がっていた. これらの問題を解決するために, ガス雰囲気下のビーム散乱を低減させ, ガスイオン化カスケード機構での低エネルギー電子のエネルギー分布を最適化し, 放電現象を抑制するとともに, 電子収集効率を最大にするような検出器 (極低真空二次電子検出器: LV-SED 検出器) が開発された<sup>8)</sup>. LV-SED 検出器を用いると, 高い試料室圧力においても, ビーム電流を大きくせずとも SN 比の高い SEM 像を得ることが出来る. その例として, 2000 Pa という高い  $H_2O$  圧の下で 70 pA と比較的小さいビーム電流で取得

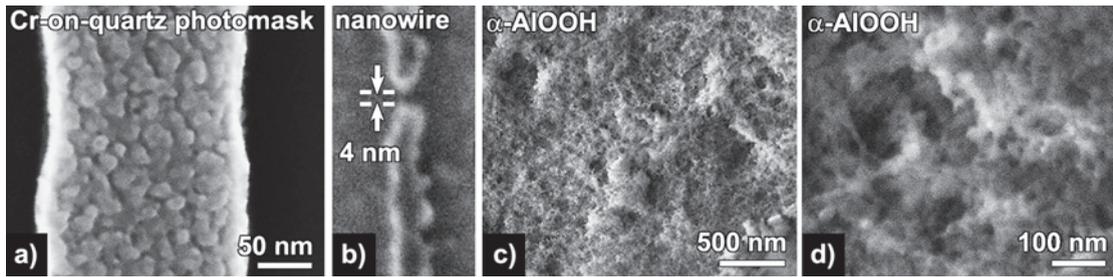


図4 Helix 検出器により取得した二次電子像. (a) フォトリソグラフィックマスク上のCr アイランド (試料室真空度 =107 Pa), (b) 水晶バルク基板上的炭素質ナノワイヤ (試料室真空度 =60 Pa), (c-d)  $\alpha$ -AlOOH エアロゲル (試料室真空度 =55 Pa).

したアモルファスカーボン基材中のスズ球体の二次電子像を図5 (a) に、また比較のため、133 Pa で取得した同試料の二次電子像を図5 (b) にそれぞれ示す。

### 5. 含水 試料および液体試料の観察

低真空環境で試料の冷却機構を有するステージを使用すると、試料温度および試料室内の真空度を自在に操作できるため、試料室内の湿度制御が可能となる。たとえば試料温度を凝固点付近に冷却すると約 600 Pa の  $H_2O$  蒸気圧下で水溶液

や含水試料の水分を保持し、真空度を上下させることで試料の乾燥または湿潤に状態が変化する。図6 (a) に示した水の飽和水蒸気曲線中の①~⑤の状態に試料室内の環境を変化させ、それぞれの環境で取得した人工雪の二次電子像を図6 (b) 示す。

また、液体試料の内部観察を行う際には WET STEM 検出器を用いる。WET STEM 検出器には STEM 像コントラスト<sup>7)</sup> 形成のための二分割半導体検出器を搭載している。二分割半導体検出器は図7 に示すように二分割検出面のそれぞれを

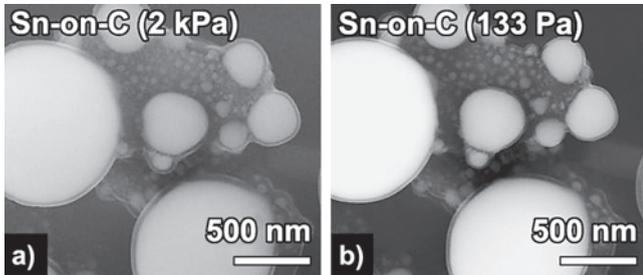


図5 (a) 低真空 (2 kPa) および (b) 高真空 (133 Pa) の異なる試料室真空度を用いて取得したアモルファスカーボン基材中のスズ球体の二次電子像。

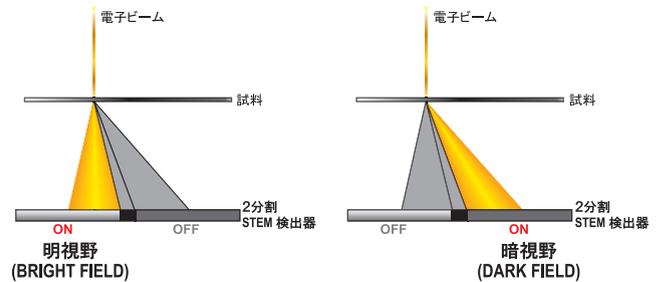


図7 二分割半導体検出器の明視野像および暗視野像取得の概念図。二分割検出面の片方ずつを On/Off できる構造であるため、容易に明視野像と暗視野像が取得できる。

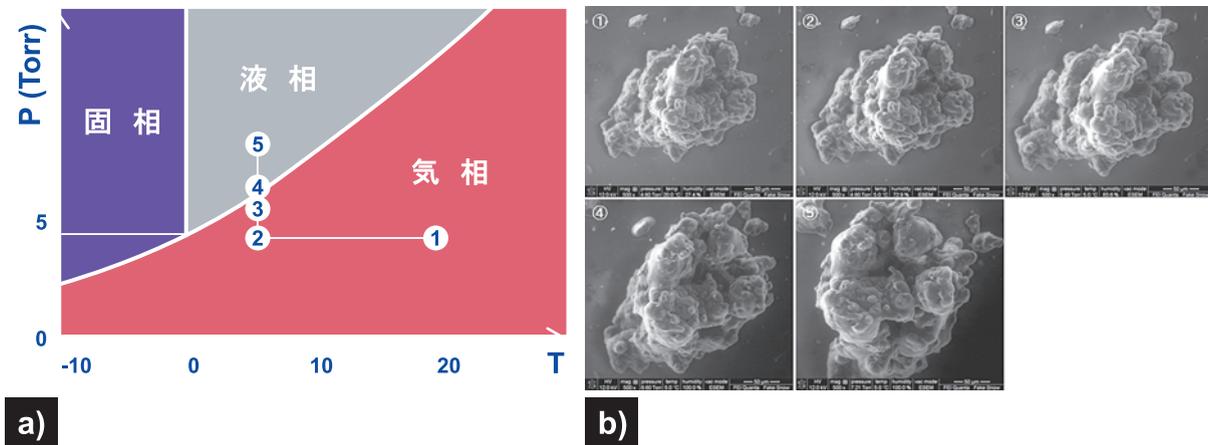


図6 (a) 水の水蒸気曲線 (左図) の①~⑤の各環境における (b) 人工雪の二次電子像。気相から液相に環境が変わる過程で、試料が湿潤していく様子がとらえられている。

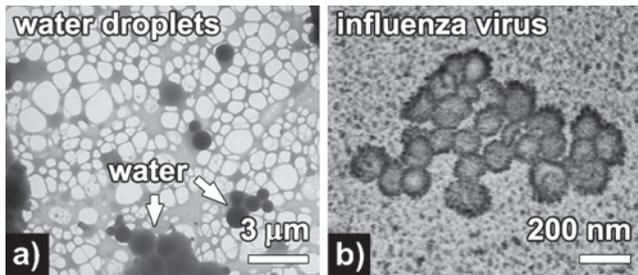


図8 Wet STEM 検出器により取得した (a) マイクログリッド上に凝集した水滴 (試料室真空度 =712 Pa, 湿度 =100%) および (b) インフルエンザウイルス (試料室真空度 =533 Pa, 湿度 =100%) の STEM 像。

On/Off できる構造であるため、容易に明視野像と暗視野像が取得できる。また、試料の冷却機構が付加しているため、上述の湿度制御機能を利用し、水溶液や含水試料を、水分を保持したまま、電子線が透過する厚みに制御できる。図8 (a) および (b) に、マイクログリッド上に凝集した水滴とインフルエンザウイルス<sup>12)</sup> の WET STEM 像をそれぞれ示す。

## 6. おわりに

近年における低真空 SEM の発展は、無蒸着の絶縁試料の超高分解能観察、含水系と液体系の SE 像または STEM 像観察、および 1000 Pa を超えるガス圧下において小さいビーム電流量で S/N の良い二次電子像観察を可能にした。これらの進歩は、過酷な電子光学および環境の条件下における低真空 SEM 像の観察のための検出手法の進展によりもたらされた。

## 謝 辞

本稿で紹介したインフルエンザウイルス試料は財団法人化学及血清療法研究所・病理部・安全性試験センターの西村伸一郎様よりご提供頂きました。試料提供ならびに取得画像に関して貴重なご意見を頂き、ここに厚くお礼申し上げます。

## 文 献

- 1) Thiel, B.L. and Toth, M.: *J. Appl. Phys.*, **97**, 051101 (2005)
- 2) Everhart, T.E. and Thornley, R.F.M.: *Journal Of Scientific Instruments*, **37**, 246-248 (1960)
- 3) Danilatos, G.D.: *Advances in Electronics and Electron Physics*, **78**, 1-102 ; 668 (1990)
- 4) Thiel, B.L., Bache, I.C., Fletcher, A.L., Meredith, P. and Donald, A.M.: *J. Microsc.-Oxf.*, **187**, 143-157 (1997)
- 5) Thiel, B.L., Toth, M., Schroemges, R.P.M., Scholtz, J.J., van Veen, G. and Knowles, W.R.: *Rev. Sci. Instrum.*, **77**, 033705 (2006)
- 6) Toth, M., Knowles, W.R. and Thiel, B.L.: *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 023105 (2006)
- 7) Toth, M., Uncovsky, M., Knowles, W.R. and Baker, F.S.: *Appl. Phys. Lett.*, **91**, 053122 (2007)
- 8) Bogner, A., Thollet, G., Basset, D., Jouneau, P.H. and Gauthier, C.: *Ultramicroscopy*, **104**, 290-301 (2005)
- 9) Toth, M., Knowles, W.R. and Phillips, M.R.: *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 072905 (2007)
- 10) Toth, M., Lobo, C.J., Knowles, W.R., Phillips, M.R., Postek, M.T. and Vladar, A.E.: *Nano Letters*, **7**, 525-530 (2007)
- 11) Kucheyev, S.O., Toth, M., Baumann, T.F., Hamza, A.V., Ilavsky, J., Knowles, W.R., Saw, C.K., Thiel, B.L., Tileli, V., van Buuren, T., Wang, Y.M. and Willey, T.M.: *Langmuir*, **23**, 353-356 (2007)
- 12) Nakamura, M.: *Meeting Program of EABS & BSJ 2006*, **46**, 2P542 (2006)