

多元ナノ構造解析システムの構築と手法開発

[研究代表者] 岩田博之 (総合技術研究所・工学部電気学科)
 [共同研究者] 高木 誠 (工学部機械学科)
 澤木宣彦 (工学部電気学科)
 坂 公恭 (総合技術研究所)

研究成果の概要

総合技術研究所では、1995年の原子的構造解析システムの後継として多元ナノ構造解析システムを2016年に導入した。研究成果としては、炭素材料、触媒の分析、結晶欠陥解析などがあり、さらに新たな手法の開発も行われている。このシステムが持つ特筆すべき機能と特徴、(1)高分解能 CTEM 観察 (位相コントラスト法)、(2)回折コントラスト法、(3) 100mm² 大面積 SDD 検出器搭載のエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDX)、(4)多様な STEM 信号検出手法、(5)立体像再構成機能、(6)各種ユーザ援用機能について報告する。特に STEM における結晶欠陥解析手法として暗視野ウィークビーム法 (WBDF) と大角度集束電子線回折法 (LACBED) を有効な手法として開発を行った。

研究分野：走査透過型電子顕微鏡、ナノテクノロジー、ナノ構造解析

キーワード：TEM、STEM

1. 研究開始当初の背景

産学連携および高度技術者養成を目的とする総合技術研究所では、ものづくりの高度化・高精度化を見越し、平成7年(1995年)に、日本電子 JEM-2010 型透過電子顕微鏡 (TEM：後述の STEM 機能を持たない旧来の TEM を STEM と区別するため CTEM と以降表記する) およびオリンパス NV2000 型走査プローブ顕微鏡 (SPM) を核とする“原子的構造解析システム”を導入した[1]。これらを中核にさらに多くの顕微鏡及び関連機器が導入された。その経緯についてはすでに本研究報告第5号(平成15年)に記した^[1]。その後集束イオンビーム (FIB) 装置の導入、走査プローブ顕微鏡 (SPM) の更新、CCD カメラの導入を続け、共同利用設備として教員・学生はもとより外部にも開放し、果・実績を積み重ねてきた[2]。

近年、地球環境保全と低炭素化社会に向けた創・省エネルギー、高付加価値、度情報化・集積化といった、さらなる高度な要求を満たすものづくりを支える基盤研究において、ナノメートルオーダーの超微小領域を対象とする微細構造解析ツールが必要となっている。その中核となるツールである TEM は導入から既に20年以上を経過し、補修部品の調達困難にかかわらず休日・深夜を

問わずフルに稼働を続けてきたが、分析精度面および操作性の点で能力が不足しつつあり、規更新が急務となっていた。

2. 研究の目的

前述の高度なものづくりを支える基盤研究である自動車用の新規電池開発や触媒技術、窒化物半導体のパワーエレクトロニクスや発光素子への応用、宇宙衛星用セラミックスの開発、微小機械システム (MEMS) の実現に関わる微細加工技術といった、電気・機械・化学などの分野の研究遂行とともに高度な技術者・研究者を育成し広く社会貢献していくことを目的とする。

材料科学分野向け分野において200kV型TEMは世界標準の汎用機と位置づけられ、JEM-2010の後継機 JEM-2100型がさらに改良された次世代機 JEM-2100Plus型が2015年に発表された。ほぼ10年ごとにモデルが更新されたことになる。関係各位の多大な配慮と幾多の幸運が重なり、発表直後の JEM-2100Plus 型の導入がかなった。

TEM 鏡筒の基本設計、光学系の諸元および真空系の構成は従来機と大差は無い。新たに追加された走査透過

顕微鏡 (STEM) モードと高感度 EDX をはじめとする新規導入の機能を最大限活かす操作方法・解析手法の開発が必要である。

3. 研究の方法

(1)高分解能 CTEM 観察 (位相コントラスト法)

鏡筒下部にガス浮上タイプの防振装置が備わり、筒ボトムには低ノイズ CMOS カメラを搭載し、型使用例では毎秒 20 枚の高速フレームレート撮影により試料ドリフトと量子化ノイズを低減している。ゾ素子駆動によるドリフトの無い nm オーダの微細試料移動が可能である。

(2)回折コントラスト法

鏡筒には集束、DX プロテクト、ター駆動対物、ントラスト、限視野の 4 種の絞り機構を備え、 α 角 (電子線収束角) の切り替え機構とともに、折コントラスト法などの各種分析手法を精度良く活用することが可能である。

(3) 100mm² 大面積 SDD 検出器搭載の EDX

高感度検出器と Thermo Fischer Scientific 社製 NNS 分析システムによる高速な元素マッピングと高度な分析を可能としている。ルチェ素子による冷却のため液体窒素は不要となった。

(4)多様な STEM 信号検出手法

観察窓の両側面に明視野 (BF) 検出器と環状暗視野 (DF) 検出器を、らに集束レンズ脇に反射電子検出機を備える。来機より STEM 信号の感度が大幅に向上し像質が向上している。HAADF、LAADF、ADF、BFSTEM、BEI、SEI 等の条件設定が可能である。

(5)立体像再構成

高傾斜試料ホルダーと System in Frontier 社製トモグラフィシステムにより、CTEM および STEM 像をもとにする 3 次元再構成機能が利用可能である。

(6)各種ユーザ援用機能

撮影条件記憶による試料位置帰還や自動の写真モニター機能による視野拡大など、WindowsPC 制御による多彩な各種援用機能が備わっているがこれらについては追って別の機会に述べることにする。撮影用の蛍光体とボトムカメラの結像はファイバーではなくレンズによる。学生利用が多い本学では焼損等のトラブルを

避けることができるなど初級ユーザが使いやすい仕様としている。

4. 研究成果

炭素材料の高分解能観察、触媒の元素マッピング分析、セラミックスの損傷の解析、ナノ加工時の欠陥解析など、従来の手法を用いてすでに多数の成果を挙げている。

STEM モードでは、等厚干渉縞等が除去され非干渉性イメージングとなり、かつ長いフォーカス深度を持つことを活かし、新たな手法として、暗視野ウィークビーム法 (WBDF) を開発 [3] した。また使い勝手を向上させた、ロンチグラムモードを経由する大角度集束電子線回折法 (LACBED) [4] を報告している。特に高感度になった BFSTEM 観察においては、照射条件の最適化により従来より 3 程度厚い試料の観察に有効であることがわかった。

STEM を用いた場合の結像および像解釈については文献 [5]-[7] に詳しく紹介されている。これら文献には、実際に本システムにて撮影された写真が多数掲載されており、結晶材料分野の多くの顕微鏡ユーザに広くバイブルとして使用されている。

5. 本研究に関する報告

[1] 岩田博之, 井村徹, 原子的構造解析システムの現状と課題, 総合技術研究所研究報告, 5, 97-99, 2003

[2] 岩田博之, 高木誠, 平野正典, 山田英介, 渡辺藤雄, 落合鎮康, 澤木宣彦, 原子的構造解析システムの現状と課題 (II), 総合技術研究所研究報告, 14, 15-18, 2012

[3] Hiroyuki Iwata, Hiroyasu Saka, Resolving individual Shockley partials of a dissociated dislocation by STEM, Philosophical magazine letters, 97, pp.74-81, 2017

[4] 岩田博之, 坂公恭, STEM ロンチグラムを経由する LACBED の有効性, 第 76 回日本顕微鏡学会学術講演会 P-I-49, 2020

[5] 坂公恭, 結晶電子顕微鏡学 (増補新版), 内田老鶴圃, 2019

[6] Hiroyasu Saka, Practical Electron Microscopy of Lattice Defects, World Scientific, 2021

[7] 坂公恭, 問題と解答-結晶電子顕微鏡学, 内田老鶴圃, 2023

謝辞

本システムの大部分は私学助成により導入されました。通常の助成額をはるかに超え、大学負担割合の増加に関わらず優先的な応募を快諾いただいた理事長はじめ関係者の皆様、煩雑な事務手続きを支援いただいた庶務課（当時）関係者の皆様、顕微鏡の設置に適した部屋を提供いただき、装置の運用や啓蒙活動に最適な環境

を提供して下さる研究所関係者の皆様に深く感謝申し上げます。また、助成の内定から設置および検収までの3週間以内という条件を無事に遂行された日本電子株式会社関係者の皆様にも謝意を示します。導入資金の一部は、本所に設置された顕微鏡群の利用者からの利用料を適切に活用したものであることを記し、利用者の皆様に深く感謝の意を表します。