

t-EBSD 法と表面処理による非導電性試料の結晶方位解析

山本悠太

名古屋大学全学技術センター 工学系技術支援室

1. 背景

Electron BackScattered Diffraction(以下、EBSD)法は、電子線を試料に照射し、後方散乱電子により形成される菊池パターンを、CCD カメラで取り込む手法である。^{[1], [2], [3]} この方法は、多結晶体の方位解析に非常に有効な手法として、様々な材料解析に用いられている。

セラミックスなど非導電性の試料は、電子線を照射するとチャージアップを起し、チャージアップは、像観察や結晶方位解析において妨げになることが良く知られている。チャージアップ対策としては、試料表面を導電性の物質でコーティングする方法が良く用いられ、カーボンや金、白金、オスmiumなどを蒸着することで、チャージアップが抑制され、像観察が可能になる。しかし結晶方位解析においては、表面のコーティング膜が厚すぎると菊池パターンのぼけや不明瞭さなどを引き起こして結晶方位の同定に失敗する原因となり、薄すぎると十分にチャージアップを低減できずに解析が阻害されてしまうため、厳密に膜厚を制御する技術が要求される。表面コーティングをしないチャージアップ対策としては、環境 SEM を用いる方法がある。^[4] 試料近傍まで伸びたガスノズルを使い、試料表面にイオン化したガスを吹き付けた状態で結晶方位解析することによりチャージアップを抑制できることが報告されているが、この方法には専用の装置が必要になるため、あまり一般的に使える方法ではない。

transmission EBSD(以下、t-EBSD)法は、近年報告された手法であり、TEM 観察が可能な厚み(理想的には100nm以下の厚み)の試料に電子線を照射して、前方に散乱した透過電子により形成される菊池パターンを取り込む手法である。この方法は、後方に多重散乱した電子により形成される菊池パターンを得る一般的な EBSD 法(standard EBSD(以下、s-EBSD)法)に対して、単一散乱の電子により形成される菊池パターンが得られるため、試料内部において散乱による電子の空間的な広がりが少なくなり、より高い空間分解能で菊池パターンを得ること、および高い分解能で結晶方位マッピングをすることが可能である。^[5] ^[6] 本発表では、この方法の原理より、この方法が有すると予測できる次の2点の特徴に着眼した。着眼点の1点目は、t-EBSD による菊池パターンは、電子線出射側の試料表面の近傍から形成される点である。電子線入射側の試料表面に何かが付着している試料の菊池パターンの取得において、s-EBSD 法では菊池パターンの劣化などが懸念されるが、t-EBSD 法の場合には影響を受けない可能性が考えられる。2点目は、前方に透過した電子の方が、試料内部まで侵入した後に後方に散乱する電子より、試料内の移動距離が短いと考えられる点である。本発表では、これら2点の特徴の実証と、これらの特徴を上手く利用した非導電性試料の結晶方位解析(図1)を報告する。

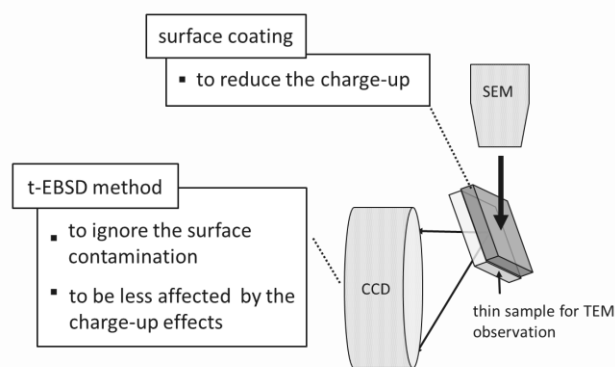


Fig.1 Concept of t-EBSD method with surface coating for orientation analysis of non-conductive materials

2. 方法

実験には、HITACHI 製の直交配置型 FIB-SEM、MI4000L を用いた。SEM 観察および菊池パターンの取得は、加速電圧 20kV で行った。また、菊池パターンの取得において、バックグラウンドの処理は Dynamic subtraction を使い、カメラの露光時間とゲインは、適宜最適化を行った。また、菊池パターンの取得における試料ホルダーアームの回転角度は、s-EBSD は 70°、t-EBSD は 60° にした。

特徴の実証には、試料としてアルミニウムを用いた。

菊池パターンに対する電子線入射側の試料表面の付着物の影響の検証では、FIB 加工により作成した、膜厚 100 nm 程度のアルミニウム試料を用いた。試料の1箇所、FIB 加工時に用いるデポジション機能を使い、カーボンを蒸着させた。デポジションでは、イオンビームのドーズ量と照射面積、照射時間を一定にし、デポジション回数ごとに s-EBSD 法と t-EBSD 法で菊池パターンを撮影した。

菊池パターンを形成する電子の試料内の移動距離の検証では、FIB 加工により 5 μm 程度の厚みでアルミニウム試料を切り出した。その後、試料の厚みを FIB 加工により徐々に薄くしながら試料の厚みごとに s-EBSD 法と t-EBSD 法で菊池パターンを撮影した。

非導電性試料には、一般的なアルミナを用い、バルク状の形態から平面イオンミリング法で加工した。EBSD マッピングは、5×5 μm² のエリアを、20 nm のステップでスキャンして得た。カーボンコーティングには、一般的なカーボンコート用のコーティング装置を用いた。

3. 結果

まずは、t-EBSD法が、着眼した通りの特徴を有するかの確認を行った。

図2に、カーボンデポジションした箇所のアルミニウムの菊池パターンを示す。デポジション回数0回では、s-EBSD法、t-EBSD法ともに、明瞭な菊池パターンが得られている。しかし、回数2回では、t-EBSD法による菊池パターンは、0回時と比較して変化が見られないのに対して、s-EBSD法による菊池パターンは、0回時と比較してやや不鮮明になっていることが分かる。また、それらの傾向は、回数が4回に増えると、より顕著である。

よって、電子線入射側の試料表面の付着物について、s-EBSD法による菊池パターンは影響を受けるが、t-EBSD法による菊池パターンには影響がないことが示された。

図3に、試料厚みの異なるアルミニウムの菊池パターンを示す。図より、s-EBSD法による菊池パターンは、100 nm以上の厚みでは同じように鮮明に得られるが、それより薄い試料厚みでは、かなり不鮮明になることが分かる。一方で、t-EBSD法による菊池パターンは、100nm以下の厚みでは同じように鮮明に得られているが、試料が厚くなると菊池パターンが不鮮明になることが分かる。50 nmの試料厚みにおいて、s-EBSDによる菊池パターンが不鮮明であり、t-EBSDによる菊池パターンが鮮明であることから、試料に入射した電子のうち、多くが電子線の出射側に透過して出てきており、入射側から出て行く電子の数が少ないことが示唆されている。非弾性散乱は同じ確率で全方向に散乱することを合わせて考えると、この結果は、50 nmの厚みのアルミニウムの試料については、電子線の出射方向に一回散乱で出て行く電子と電子線の入射方向に多重散乱で出て行く電子では、電子線の出射方向に一回散乱する電子の方が、移動距離が短いことが分かる。よって、試料が十分に薄い場合には、t-EBSD法により取得できる菊池パターンを形成する電子の方が、試料内の移動距離が短いことが示された。

上述した知見をもとに、平面イオンリング法により作成したアルミナ試料について、20~30 nm程度の膜厚でカーボンをコーティングし、t-EBSD法による結晶方位マッピングを行ったところ、チャージアップの阻害を受けずに結晶方位マッピングを得ることに成功した。

4. 結論

t-EBSD法は、菊池パターンの取得において電子線入射側の試料表面の付着物に影響を受けないこと、および試料内の移動距離が短い電子により形成される菊池パターンを得ていることが確認された。

表面処理とt-EBSD法によって、非導電性試料の結晶方位解析に成功した。

5. 謝辞

研究会へ参加する機会を頂いた名古屋大学工学部技術部のみなさまに、厚く御礼申し上げます。また、工学部技術部 分析・物質技術系技術課のみなさまに、重ねて感謝致します。討究の場を頂きました名古屋大学の武藤俊介教授、散乱現象をご教授頂きました名古屋大学の山本剛久教授にも、この場を借りて感謝の意を表明致します。

6. 参考文献

- [1] D. J. Prior et al, American Mineralogist, 84, pp.1741-1759 (1999).
- [2] J. A. Small et al, Journal of Microscopy, 206, pp.170-178 (2002).
- [3] S. Zaefferer, Ultramicroscopy, 107, pp.254-266 (2007).
- [4] S. S. Zabeleta et al, Microscopy and Analysis, 27, pp.23-26 (2013).
- [5] R. R. Keller et al, Journal of Microscopy, 245, pp.245-251 (2011)
- [6] D. Robert et al, ACS nano, 7, pp.10887-10894 (2013)

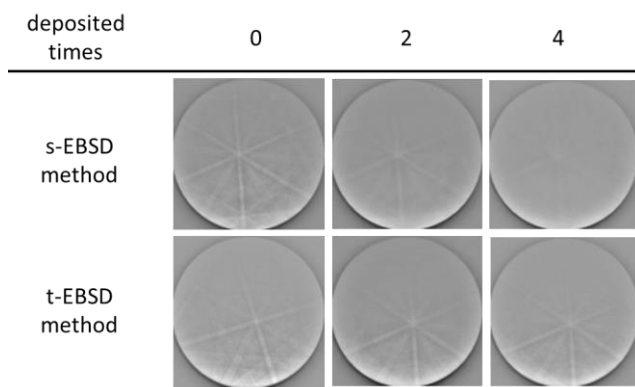


Fig.2 Kikuchi patterns of carbon deposited thin aluminum acquired by s-EBSD method or t-EBSD method

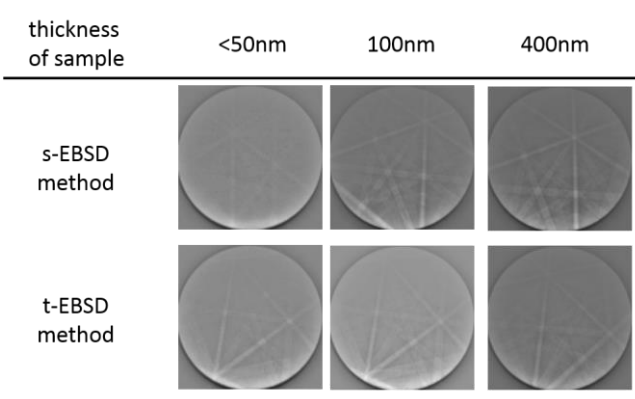


Fig.3 Kikuchi patterns of thin aluminum acquired by s-EBSD method or t-EBSD method