透過電子顕微鏡によるステレオ観察の計測精度

丹羽 崇文^{*1} 池松 陽一^{*2} 谷山 明^{*3} 進藤 大輔^{*4}

東北大学素材工学研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 67, No. 2 (2003), pp. 93–97
© 2003 The Japan Institute of Metals

Accuracy of Measurements in Stereoscopic Observation by Using Transmission Electron Microscope

Takafumi Niwa^{*1}, Yoichi Ikematsu^{*2}, Akira Taniyama^{*3} and Daisuke Shindo^{*4}

Institute for Advanced Materials Processing, Tohoku University, Sendai 980–8577

To evaluate the accuracy of measurements using stereoscopic observation employing a transmission electron microscope (TEM), the thickness ($\sim 0.6 \mu\text{m}$) of platelet-type $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ particles was investigated by stereoscopic observation using TEMs and imaging plates. The accuracy of these measurements was evaluated by comparing t_s with t_g , where t_s and t_g were the thicknesses determined by stereoscopic observation and geometric calculation taking the particle's shape into account, respectively. The standard deviation of the difference between t_s and t_g decreases with increased tilt angle up to 20° . The minimum standard deviation of the difference was evaluated to be 4.8% at a tilt angle of 20° . From the present study, it was found that a particle's shape, such as thickness on a sub-micrometer scale, can be evaluated by stereoscopic observation using a TEM set at the highest accuracy at a tilt angle of about 20° .

(Received September 10, 2002; Accepted December 16, 2002)

Keywords: stereoscopic observation, transmission electron microscopy, platelet-type $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ particles, imaging plate, specimen thickness

1. 緒 言

透過電子顕微鏡 (TEM : Transmission Electron Microscope) は、従来より微小領域における材料の形態や結晶構造を明らかにする評価装置として種々の先端材料の構造解析に応用されている¹⁾。TEM を用いたステレオ観察は、傾斜角を変えて撮影された一対の TEM 像を、ステレオビューワなどを用いて立体視する方法であり、結晶における微小欠陥の 3 次元分布の解析や微粒子の形態評価に応用されてきた²⁾。この TEM によるステレオ観察では、主に写真フィルムに撮影された、あるいは印画紙に焼き付けられた電顕画像を人間の目によって定性的に評価する方法が行われてきた。このため、TEM を用いたステレオ観察の寸法計測における計測精度は、これまで殆ど不明のままであった。

イメージングプレートは、電顕画像をデジタルデータとして取り扱うことが可能である^{3–6)}。このデジタルデータとなった電顕画像をコンピュータの画面上に表示させ、適切なソフトウェアを用いることにより、より客観的な寸法計測が可能である。従って、ステレオ観察により得られる TEM 像をイメージングプレートに記録することにより、従来の写真フィルムで評価が困難とされていたステレオ観察における寸法計測の計測精度をより定量的に検討できるものと考えられる。

本論文では、TEM とイメージングプレートを用いたステレオ観察法により六角盤状ヘマタイト微粒子の厚みを評価し、粒子形状を考慮した幾何学計算により得られるヘマタイト微粒子の厚みと比較することにより、ステレオ観察における計測精度を評価した。さらに、粒子厚みの計測精度に及ぼす傾斜角度の影響を把握することにより、TEM を用いたステレオ観察による寸法計測の最適傾斜角について検討を行った。

2. 実 験 方 法

2.1 六角盤状ヘマタイト微粒子の作製および TEM 観察

ステレオ観察に用いた六角盤状ヘマタイト微粒子の合成条件は、ゾルーゲル法で作製されたものであり、東北大学多元物質科学研究所 杉本忠夫教授に提供頂いた。ゾルーゲル法による六角盤状ヘマタイト微粒子の合成条件の詳細について

^{*1} 東北大学大学院生、現在：東京エレクトロン九州㈱プロセス技術部 (Graduate Student, Tohoku University, Present address: Process Technology Dept., Tokyo Electron Kyushu Ltd.)

^{*2} 現在：新日本製鐵株式会社先端技術研究所 (Present address: Advanced Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corp.)

^{*3} 現在：住友金属工業株式会社総合技術研究所 (Present address: Corporate Research and Development Laboratories, Sumitomo Metal Industries, Ltd.)

^{*4} 現在：東北大学多元物質科学研究所 (Present address: Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University)

は、文献(7)を参照されたい。この粉末状のヘマタイト微粒子をブタノール中に分散させた後、 $\phi 3\text{ mm}$ のマイクログリッド上に支持し、自然乾燥後 TEM 観察に供した。

ステレオ観察には、加速電圧 200 kV の TEM(日本電子製 JEM-2010 および JEM-2000EX)を用いた。TEM 像の撮影には、富士写真フイルム製のイメージングプレート(FDL-UR-V, $25\text{ }\mu\text{m} \times 25\text{ }\mu\text{m}/\text{pixel}$)を用い、同社製のソフトウェア Image Gauge を用いて寸法計測を行った。

2.2 TEM を用いたステレオ観察の原理

Fig. 1 は、ステレオ観察の原理を示した模式図であり、点 O は試料上の基準点、点 P および Q は試料上の被測定点、面 XY は入射電子線に垂直であり点 O を含む面である。X 軸を回転軸として試料を角度 θ 傾斜することにより、点 P および点 Q がそれぞれ点 P' および点 Q' に移動することとなる。ここで、点 P, Q 間の高さの差 Δh を求める場合、点 P および点 P' の XY 面での距離 p および p' からの高さ $h(p)$ は次式で与えられる。

$$h(p) = p' / \sin \theta - p / \tan \theta \quad (1)$$

同様に点 Q に対する高さ $h(q)$ は次式で与えられる。

$$h(q) = q' / \sin \theta - q / \tan \theta \quad (2)$$

従って、点 P, Q 間の高さの差 Δh は、式(1), (2)より、
 $\Delta h = |h(p) - h(q)| = |(p' - q') / \sin \theta - (p - q) / \tan \theta|$ (3)
 となる。

TEM を用いたステレオ観察により、Fig. 2 に示すような形状をもつ試料の厚さ t を計測する場合、まず、電子線の入射方向と試料の厚さ方向が平行となるように試料の方位を合わせる。この状態の傾斜角を 0° とし、試料側面部のイメージングプレート上に投影された長さ l を計測する。次に、試料を α° 傾斜し、同様に試料側面部の投影された長さ l' を計測する。式(3)より、試料の厚さ t は、次式で求められる。

$$t = l' / \sin \alpha - l / \tan \alpha \quad (4)$$

Fig. 1 Principle of stereoscopic observation.

2.3 幾何学形状を利用したヘマタイト微粒子の厚さ評価

Fig. 3 は、電子線を粒子の主平面である $\{0001\}$ 面に対して垂直に入射した際に得られる六角盤状ヘマタイト微粒子の TEM 像と電子回折図形である。Fig. 3(a) より、このヘマタイト微粒子は正六角形の盤状の形態であり、さらに、Fig. 3(b) に示した電子回折図形から、粒子は単結晶であり、六回の対称性を有していることがわかる。この平面 TEM 像の観察結果とともに、これまでに報告されている TEM による詳細な形態評価の結果^{8,9)} を考え合わせると、ヘマタイト微粒子は主平面および側面がそれぞれ $\{0001\}$ 面および $\{\bar{1}012\}$ 面から構成された Fig. 4 に示すような形状であり、主平面 $\{0001\}$ と側面 $\{\bar{1}012\}$ のなす角度 ϕ の値は 57.6° である。この ϕ の値と微粒子のエッジ部がくさび状であることから、この六角盤状ヘマタイト微粒子の厚さ t は、次式より求めることができる。

$$t = d \cdot \tan \phi \quad (5)$$

ここで、 d は粒子のエッジ部の幅である。よって、Fig. 3(a) に示すような TEM 像から粒子の各辺についてそれぞれ d を求め、式(5)から粒子の厚みを評価した。

2.4 ステレオ観察によるヘマタイト微粒子の厚さ評価

ステレオ観察の具体的な手順として、まず、六角盤状ヘマタイト微粒子の主平面である $\{0001\}$ 面に対して電子線が垂直に入射するように、微粒子の結晶方位を合わせる。この状態の傾斜角を 0° とし、 $0 \sim 35^\circ$ の傾斜範囲において 5° 毎に微粒子の TEM 像をイメージングプレートに撮影した。また、ステレオ観察における寸法計測で重要な試料の傾斜軸は、表面が平坦である Si ウェハを張り合わせた断面試料を用い、その張り合わせた面を試料ホルダーの長手方向と平行となるように支持したあと、TEM 観察により張り合わせ面の方向を確認することにより決定を行った。本研究で用いた六角盤状ヘマタイト微粒子には、Fig. 3 に示すように明瞭な頂点が存在することから、これらの頂点を一對のステレオ像間における対称点の同定に利用した。ステレオ観察における試料厚みの具体的な計測方法を Fig. 5 に示す。まず、辺 AB お

Fig. 2 Schematic illustration showing the measurement of sample thickness of a platelet-type hematite particle by stereoscopic observation using TEM.

よび辺 CD のそれぞれの中点を点 N および点 M とする．次に，中点 M から TEM 像上の傾斜軸の方向を示す直線に対して垂線を下ろし，辺 EF との交点を点 G とする．辺 MG

Fig. 3 TEM image (a) and an electron diffraction pattern (b) of a platelet-type hematite particle. The incident electron beam is parallel to the $[0001]$ direction of the hematite particle.

と辺 MN とのなす角を ε とすると辺 MG の長さは次式で求めることができる．

$$\overline{MG} = \overline{MN} / \cos \varepsilon \quad (6)$$

粒子を τ° 傾斜した後の辺 MG の長さを $\overline{MG'}$ とすると式 (4) より，ステレオ観察によるエッジ部の厚さ t_s は次式で求められる．

$$t_s = \overline{MG'} / \sin \tau - \overline{MG} / \tan \tau \quad (7)$$

以上の方法により，傾斜角 0° と各傾斜角において撮影された TEM 像から六角盤状ヘマタイト微粒子の厚みを評価した．

3. 結果および考察

Fig. 6 は，傾斜角 $0 \sim 35^\circ$ の範囲において 5° 間隔で傾斜さ

Fig. 4 Schematic illustration showing the morphology of a platelet-type hematite particle. The specimen thickness t can be obtained by measuring the edge width of the particle.

Fig. 5 Measurement procedure of sample thickness of a platelet-type hematite particle by stereoscopic observation using TEM.

Fig. 6 TEM images of a platelet-type hematite particle obtained with a tilt angle from 0° to 35°.

せた際の六角盤状ヘマタイト微粒子の TEM 像である。TEM 像のフォーカスは全て Fig. 6(a)中の矢印で示したエッジ部に合わせて撮影を行った。傾斜角 35°の TEM 像(Fig. 6(h))では、ディフォーカス量が非常に大きいため、試料のエッジ部にフレネルフリンジに対応した白あるいは黒の縞状のコントラストが発生していることがわかる。このフレネルフリンジは、粒子のエッジ部分を不明瞭にするため、ステレオ観察における寸法計測の精度を低下させる原因のひとつであると考えられる。

Fig. 7 は、ステレオ観察により計測した厚さ t_s と微粒子の幾何学的形状を利用した方法から計測される厚さ t_g との関係を示す傾斜角 5° (a) および 20° (b) におけるグラフである。Fig. 7(a) より傾斜角 5° では、 t_g と t_s の間の対応においてバ

Fig. 7 The relationship between t_s and t_g at tilt angle (a) 5° and (b) 20°. t_s and t_g show the thickness of the specimen, obtained respectively by stereoscopic observation and geometric calculation taking the particle shape into consideration.

Table 1 Standard deviation of difference between t_s and t_g .

Tilting angle (degree)	5	10	15	20	25	30
Standard deviation (%)	14.5	9.6	5.8	4.8	7.9	6.2

ラツキがみられるが、傾斜角 20°では、 t_g と t_s は試料の厚さに依存することなく両者は良く一致していることがわかる (Fig. 7(b)).

Table1 は、各傾斜角での t_g と t_s の間のずれ量 ($|t_s - t_g|/t_g \times 100(\%)$) の標準偏差である。この表から、傾斜角 5°では、 t_g と t_s の間のずれ量の標準偏差の値は 14.5% と大きな値を示しているものの、傾斜角の増大とともに徐々に減少し、傾斜角 20°において、その値は最小となる。さらに 25~30°の傾斜角では、ずれ量の標準偏差の値はほぼ一定の値を示している。以上の検討から、TEM を用いたステレオ観察において最も高い計測精度が得られる傾斜角度は 20°であることが明らかとなった。

傾斜角度が小さい場合の t_g と t_s の間のずれの発生原因は、ステレオ観察により得られた計測データから、試料厚みを算出するために利用する式(7)中で、 $\sin \tau$, $\tan \tau$ が非常に小さい値を取るために、ヘマタイト微粒子のエッジ部分の測定時に発生すると考えられる計測誤差が拡大することによるものと推定される。従って、傾斜角度が小さい場合の t_g と

t_s の間のずれ量を低減するためには、より精密な寸法計測が必要となる。一方、傾斜角度が大きい場合、TEM 像における像の歪みやぼけ、試料エッジ部でのフレネルフリンジの発生に伴う寸法計測時の誤差がずれの発生原因と推定された。従って、傾斜角度が大きい場合に高い精度で寸法計測を実施するためには、被測定点に対して正確にフォーカスを合わせることが必要となる。なお、傾斜角が大きい場合、試料の形態によっては測定が困難となることがあるため、試料の形態から傾斜可能な角度範囲を事前に検討する必要があると考えられる。

4. 結 論

TEM とイメージングプレートを用いたステレオ観察により、六角盤状ヘマタイト微粒子の厚みを評価し、粒子の幾何学形状から求められる試料厚みとの比較から、ステレオ観察の計測精度について検討を行った。主な結果は、以下の通りである。

(1) ステレオ観察により評価される六角盤状ヘマタイト微粒子の厚さ t_s と粒子の幾何学的な形状を利用して求めた厚さ t_g との相関を検討し、傾斜角 $0 \sim 35^\circ$ の範囲において、傾斜角 20° で両者のずれの標準偏差は 4.8% となり、最も高い計測精度が得られることがわかった。

(2) 20° より小さい傾斜角度における t_s と t_g の間のずれ量は、六角盤状ヘマタイト微粒子のエッジ部分の幅をステレオ観察により評価する際に発生する測定誤差に起因しているものと考えられた。一方、 20° より大きい傾斜角度における両者のずれは、試料エッジ部でのフレネルフリンジの発生や TEM 像の歪みなどに伴う寸法測定時の測定誤差が主な原因であると考えられた。

文 献

- 1) D. Shindo and K. Hiraga: *High-Resolution Electron Microscopy for Materials Science*, (Kyoritsu Shuppan, 1996). (in Japanese)
- 2) M. Kiritani: *Denshi Kenbikyo* **16**(1981) 71-81. (in Japanese)
- 3) N. Mori, T. Oikawa, T. Katoh, J. Miyahara and Y. Harada: *Ultramicroscopy* **25**(1988) 195-202.
- 4) T. Oikawa, N. Mori, N. Tanaka, Y. Harada and M. Ohnishi: *J. Electron Microsc.* **39**(1990) 437-443.
- 5) D. Shindo, K. Hiraga, T. Oikawa and N. Mori: *J. Electron Microsc.* **39**(1990) 449-453.
- 6) D. Shindo, T. Oku, J. Kudoh and T. Oikawa: *Ultramicroscopy* **54**(1994) 221-228.
- 7) T. Sugimoto, S. Waki, H. Itoh and A. Muramatsu: *Colloids Surf. A* **109**(1996) 155-165.
- 8) D. Shindo, B.-T. Lee, Y. Waseda, A. Muramatsu and T. Sugimoto: *Mater. Trans., JIM* **34**(1993) 580-585.
- 9) D. Nishino, A. Nakafuji, J.-M. Yang and D. Shindo: *ISIJ Int.* **38**(1998) 1369-1374.