

**キーワード**

プラズマ、イオンビーム、環境セル型透過電子顕微鏡、隔膜、窒化物薄膜

Plasma, Ion Beam, Environmental-cell Transmission Electron Microscopy, Diaphragm, Nitride Thin Film

**研究内容**

**[1] パルスパラメータ可変型磁場援用パルスプラズマ源の開発と環境セル型透過電子顕微鏡用隔膜の開発**

本研究では、図1に示すようなパルスパラメータ可変型磁場援用パルスプラズマ源を開発し、任意のパルス形状を電極に印加することで、発生したプラズマ内のイオン・電子の挙動をコントロールし、チャージアップの軽減や原料ガスや基板の反応を促進できる化学気相成長法を目指している。また電極へ磁場を援用することで、密度の高いプラズマを生成し、反応の促進や堆積速度の向上を図っている。現在、この装置を利用して環境セル型透過電子顕微鏡(E-TEM)用隔膜の開発を行っている。E-TEMは、通常のTEMに使用されている試料ホルダーの先端に環境セル(試料室)を設け、ガス雰囲気中における生体試料や反応触媒を観察可能にしたシステムである。環境セルには、ガスが分析室に漏れないために完全にガスを封じ込め、かつ電子線を透過するための窓(隔膜)が必要となる。隔膜に必要な条件として光源が回折しないアモルファスであること、環境セル内外の圧力差に耐える強度、光源あるいは信号が減衰しないために均一な薄膜であることなどが求められる。隔膜にはアモルファスのカーボン膜が使用されていたが、電子線により励起された酸素によってエッチングされ数秒で破損していた。現在では a-SiN 隔膜が一般的に用いられている。今後、更なる高圧雰囲気下における観察や液中観察の実現のため、高い耐圧性および化学的不活性を有する隔膜の開発が望まれている。ここでは、ヘキサメチルジシラザンと窒素の混合ガスをパルスパラメータ(電圧、パルス幅、周波数)を任意に変化してプラズマ化し、高強度なアモルファス SiCN 隔膜の開発に着手している[2]。

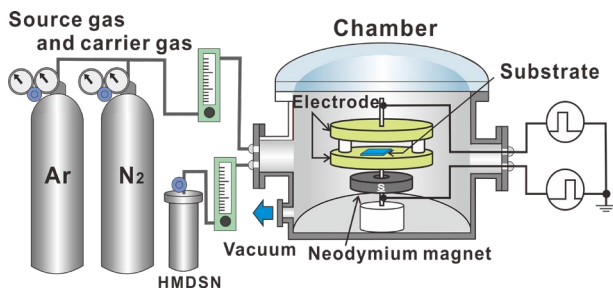


図1 パルス可変型 MPECVD 装置概略図

**[2] イオンビームを用いた有機物質表面改質による極薄窒化物隔膜の開発**

本研究では、低エネルギーイオン(数百 eV)の物質に対する浅い侵入深さ(数 nm)に着目し、トリアセチルセルロースやケイ素を含む高分子材料に低エネルギー窒素イオンを照射し、イオンによる未改質部分のみ、有機溶媒でエッチングすることで極薄膜の隔膜を作製した[1,3-4]。図2(a)に加速電圧0.8、1.0 kVにおける電流密度を変化させたシリコン表面に照射したときの改質層の膜厚分布を示す。E-TEMによる観察結果より、最も薄い隔膜は膜厚14.6 nmの連続膜であり、アモルファスで300 kVの電子線に対して透明であることがわかった(図2(b))。

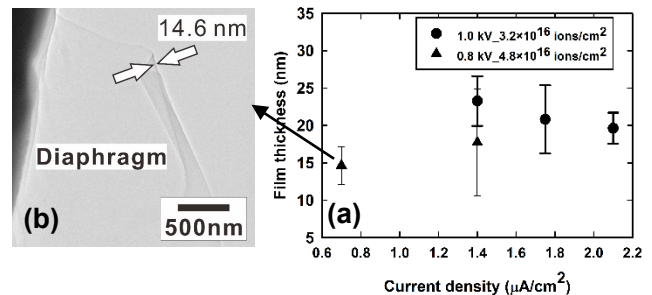


図2 窒素イオンの加速電圧0.8 kV, 1.0 kVにおける電流密度を変化させたときの改質層の膜厚(a)および加速電圧0.8 kV, 電流密度0.70  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ における改質層のTEM写真(b)

**最近の業績**

- [1] "Surface modification of triacetylcellulose by low-energy nitrogen ions for diaphragm of environmental cell transmission electron microscope" Takaomi Matsutani, Masanori Murano, and Tadahiro Kawasaki, Surface & Coatings Technology 344 (2018) 58–61.
- [2] "Effect of pulse parameter change on a-SiCN diaphragms for environmental cells fabricated by magnetic-field- and pulsed-plasma-enhanced chemical vapor deposition" Masanori Murano, Takaomi Matsutani, and Tadahiro Kawasaki, Vacuum 158 (2018) 60–64.
- [3] "Silicone-based modified layer obtained by low-energy nitrogen ion beam as diaphragm for environmental transmission electron microscope" Yuki Tai, Takaomi Matsutani, and Tadahiro Kawasaki, Surface and Coatings Technology 385 (2020) 125448.
- [4] "Nitrogen ion beam thinning of a-SiCN diaphragm for environmental cell prepared by low-energy ion beam enhanced chemical vapor deposition" Takaomi Matsutani, Yuki Tai, and Tadahiro Kawasaki, Vacuum 182 (2020) 109770.