解 譏 - - -

# 3次元アトムプローブによる磁性薄膜解析の新展開

## Application of Three-dimensional Atom Probe to Thin Film Analysis

宝野和博・大久保忠勝・高橋有紀子 K. Hono, T. Ohkubo, and Y. K. Takahashi

物質・材料研究機構,つくば市千現 1-2-1 (〒305-0047) National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba 305-0047, Japan

Recent advances in specimen preparation methods from thin films using the focused ion beam technique have made it possible to apply the atom probe technique for atomic layer characterization of various magnetic thin films. This paper reviews the recent advance in the 3DAP technique and its applications to thin film analysis. Compositional change at the interfaces of multilayer thin films, such as spin valves, has become possible with 3DAP. Future trends of atom probe instrumentation are also mentioned.

**Key words**: atom probe, field ion microscope, threedimensional atom probe, APFIM, 3DAP, magnetic thin film, multilayer thin film

## 1. はじめに

アトムプローブ (AP) は電界イオン顕微鏡 (FIM) に飛行 時間型質量分析計を取り付けた装置で, Fig. 1(a) に示され るように針状の試料表面から電界蒸発するイオンの質量を 飛行時間測定により計測し原子種を同定する手法である. これによりプローブホールと呼ばれる絞りで選択された数 nm の領域から試料の深さ方向への濃度プロファイルを得 ることができる. この装置は 1967 年にペンシルバニア州 立大学の E. W. Müller により発明され<sup>1)</sup>, その後限られた グループによって金属表面の研究と金属材料のナノ組織解

析に用いられてきたが、それが一般的な分析装置として広 く普及することはなかった. 1988年にオックスフォード 大学の A. Cerezo らは Fig. 1(b) に示すようにアトムプ ローブに位置敏感型検出器を導入し、イオンの飛行時間測 定と位置測定を同時に行って2次元の元素マップを得る ことのできる位置敏感型アトムプローブ (Position Sensitive Atom Probe; POSAP)を開発した<sup>2)</sup>. 当初の POSAP ではパルス電圧により複数個の原子がイオン化すると位置 測定ができなくなるという制約から、極めて低いイオン化 速度でデータ収集を行う必要があり、分析速度も非常に遅 い装置であった。また複数個の原子が検出された場合にそ のデータを棄却していたので、原子の検出効率も10%程 度の低いものであった. その後, ルーアン大学の D. Blavette らは同時到着した複数の原子の位置測定も可能な装 置を開発し、これを Tomographic Atom Probe (TAP)と 命名した<sup>3)</sup>. 位置敏感型検出器を装備したアトムプローブ の直接のデータは各元素の質量電荷比と(x, y)の2次元座 標であるが、原子のイオン化は試料表面から順次起こるた めに,原子を検出した個数に比例した z 座標を与えると, 2次元マップを深さ方向に拡張することができる. そのた め位置敏感型検出器を装備したアトムプローブを現在では 総称して3次元アトムプローブ(3DAP)と呼んでいる. 位 置敏感型検出器としては電荷の分布を測定する方式<sup>2), 3)</sup>か



**Fig. 1** Schematic illustrations of the basic principles of (a) conventional atom probe field ion microscope (APFIM) and (b) three-dimensional atom probe (3DAP).

ら CCD カメラで位置測定を行う方式<sup>4).5</sup>)に移行していき, 現在では遅延線を用いて高速に位置測定を行う検出器が一 般的になってきている<sup>6)</sup>. 遅延線を用いた最近の 3DAP で は,複数個の同時到達イオンを検出することができるだけ でなく,分析速度も非常に向上してきており,3DAP は今 や究極的な局所分析手法として金属系の研究機関に普及し 始めている.また 3DAP が 3 社から商品化されることに より<sup>7)~9)</sup>,これまでアトムプローブ分析法に全く経験のな かったグループにも普及し始めている.

筆者は本誌で1994年と2000年に、アトムプローブに よる磁性材料のナノ組織解析について解説している<sup>10,11</sup>. 1994 年当時 3DAP は黎明期であり、そのときの「展望」で は3DAPには触れていない<sup>10)</sup>. 2000年の「解説」では 3DAPによるナノ結晶軟磁性材料とナノコンポジット磁 石の解析例を紹介しているが、薄膜解析については言及し ていない<sup>11)</sup>. アトムプローブ分析用の試料は試料表面で高 電界を必要とするために、先端の直径が100 nm 程度の先 鋭な針でなければならないが、薄膜から有効な針状試料作 製成法がなかったために、薄膜解析への応用例は最近まで あまりなかった. しかし, 近年収束イオンビーム法 (FIB) を応用することにより、薄膜の面内方向はもとより、多層 膜の面直方向への分析もできるようになってきた. また 3DAP のハード面でも、試料・検出器間距離を短くして検 出器の開口角を広げることにより従来の20倍以上の広領 域からも原子収集が可能な装置が開発されており<sup>8)</sup>, 3DAPの分析領域も飛躍的に拡大している.本稿では, 2000年以後の技術的な進展に重点を置いて, 3DAP が将 来磁性薄膜解析にどのような可能性をもっているかについ て述べる.

#### 2. 3次元アトムプローブ

3次元アトムプローブ (3DAP)の基本的原理は Fig. 1(b) に集約されている.先端の直径が 100 nm 程度の先鋭な針 に10kV程度の電圧をかけると、半球状の試料表面で数 + V/nm 程度の高電界が発生する. このような高電界下 では電界蒸発と呼ばれる現象により表面原子がイオン化す る. 試料にかけた定常電圧 V<sub>dc</sub> に数十 ns 幅で数 kV のパ ルス電圧を重ね合わせてイオン化を起こさせると、パルス をかけた瞬間からイオンが加速されて検出器に到達する飛 行時間を測定することができる. イオンのエネルギーと飛 行距離は既知であるので、 $m/z=2V(t/l)^2$ の関係から質量 電荷比が求まる. ここで m は原子の質量, z はイオンの価 数, t は飛行時間, l は飛行距離, V はイオンの電圧である. このとき Vは  $V_{dc}$ にパルスのピーク値  $V_{p}$ を加えたものと なるが、原子が必ずしもパルスピークでイオン化しないた めにイオンのエネルギーに  $V_{dc} + V_p$ を最高値として低エ ネルギー側に広がりが生ずる. つまり、 $V = V_{dc} + \alpha V_{p}$ とな り、直線型の飛行時間質量分析方式では高い質量分解能を





**Fig. 2** Atom probe mass spectra obtained by (a) straight type 3DAP and (b) energy-compensated 3DAP.

得ることができない. 開発当初の 3DAP はすべて Fig. 1 (b) に示すような直線型飛行時間型質量分析を行っていた ので, 質量分解能は Fig. 2(a) に示すように満足な値が確 保されていなかった.

このような直線型 3DAP の低い質量分解能を改善する ために、Cerezo らは従来型のアトムプローブでエネル ギー補償に使われてきたリフレクトロンを短飛行距離と広 開口角に改良して 3DAP に装備し、位置情報を大きく失 わずに質量分解能を改善できることを実証した<sup>12)</sup>. Fig. 3 はリフレクトロンを装備したエネルギー補償型 3 次元ア トムプローブの模式図である. この図では位置検出器とし てマイクロチャネルプレートアセンブリーの蛍光板上に映 る輝点の位置を CCD カメラで読み取る方式を示している が、この検出器は電荷検出方式でも遅延線方式のものでも よい. このようにエネルギー補償を行うことにより、Fig. 2(b) に示すように質量分解能が著しく改善され、通常の合 金に含まれているほぼすべての元素を完全に分解できるよ うになる.

3DAP で得られる情報を説明するために,Sm(Co,Fe,Cu,Zr)7.5 焼結磁石の電子顕微鏡 (TEM)像,FIM像,3 DAP による元素マップを Fig.3 に示している<sup>13)</sup>.この磁石は Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> と SmCo<sub>5</sub> の 2 相領域の組成をもつ合金で,焼結後,溶体化処理によりいったん Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> 単相とする. これを 1027 K 近くで時効処理すると過飽和な Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> 相から SmCo<sub>5</sub> 相が析出し,Fig.4(a) に示されるようなセル組織が形成される.菱形状のセルが母相の Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>相であり,相分解によってセル境界相である SmCo<sub>5</sub>相が形成する.この SmCo<sub>5</sub>相は非常に大きな結晶磁気異方性  $K_u$ 



**Fig. 3** Schematic illustration of an energy compensated three-dimensional atom probe (EC-3DAP) with a reflectron.

をもつ化合物であるので、この界面での K<sub>u</sub> の差がピニン グ力として有効に作用する. 同時に Zr を含む Z-相と呼ば れる板状析出物が (0001) 面に沿って析出し、これが Cu 原 子の拡散パスとして作用すると言われている. この磁石材 料の 1027 K での時効効処理後の保磁力は 500 Oe 程度で しかないのに、それから 773 K まで 0.5 K/min で徐冷す ることにより保磁力が 13 kOe 程度まで増加する. この 間、構造的な変化は TEM や X 線回折では検出されないの で、Cu 原子がセル境界相に拡散して分配することにより、 何らかのメカニズムで保磁力が増加すると考えられてい る. そのため、これらの 3 相の中の Cu の濃度を精密に原 子レベルで解析する必要があった.

Fig. 4(b) は徐冷処理された試料の FIM 像であるが,均 一に明るく観察される部分が Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub> 相であり,底面に 析出する Z-相の板状析出物は針の先端ではリング状に観

察される. セル境界相である SmCo<sub>5</sub> 相は融点の低い Sm 原子の濃度が母相よりも高いために FIM 像では暗く観察 される. このように FIM 像でも三つの相の存在が確認さ れるが、これにさらに高い電圧を掛けて原子をイオン化さ せて収集した Sm, Fe, Cu, Zr の 3 次元原子マップが Fig. 4 (c) に示されている. ここで, 原子を収集した分析領域は約 26×26×50 nm であり, Sm 原子マップでは層構造が観 察される. この層構造は Sm 濃度の高い面が底面の (0002) 面で1枚ずつ交互に出てくる Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>相の構造を反映し たものであり、3DAP が分析の深さ方向に原子面の分解能 をもつことを示している. Sm 原子が完全に抜けて Zr 原 子に置換している底面の部分が Z-相であり、Cu の密度が 高くなっている部分がセル境界の SmCo<sub>5</sub>相である. Cu 原 子はセル境界相に優先的に分配しており、さらに詳細な解 析により Cu と Fe の濃度プロファイルが SmCo5 相より も少し広がっていることが明らかにされた. このように3 DAPを用いると、合金組織のナノスケールの元素分布を 定量的に解析できるので、特にナノコンポジット磁石材料 やナノ結晶軟磁性材料の組織形成のメカニズム解明やナノ 組織と磁気特性の因果関係の解明に決定的な役割を果たし てきた14), 15)

## 3. 薄膜試料作製法

先にも述べたように、3DAP 用試料は先端の直径が100 nm 程度の先鋭な針でなければならない. 通常のバルク合 金試料であれば、0.2 mm×0.2 mm×5 mm に切り出した 試片から電解研磨で針状試料に仕上げる.少し経験があれ ば数分程度の作業で試料を作製することができる.しか



**Fig. 4** (a) TEM image, (b) FIM image, and (c) 3DAP elemental maps obtained from  $Sm(Co, Fe, Cu, Zr)_{7.5}$  sintered magnet with an optimal heat treatment condition. Data adopted from ref. 11.

し、実用的に重要な磁性材料の多くは薄膜であり、記録媒体やスピンバルブなどは複雑な多層膜構造を有している. これまで、薄膜構造は本企画で取り上げられたように電子 顕微鏡やそれに付随した EDS、EELS などの分光的手法に より解析されてきた.しかし CCP-CPP-GMR 素子などに 見られるように多層膜構造は 3 次元的に複雑な構造をも つようになってきており<sup>16)</sup>、その微細構造解析が電子線の 透過像を基本とする電子顕微鏡手法の分析限界以下になっ てきている.そのため、3DAPを用いて、磁性薄膜の局所 組成をより精密に解析しようとする機運が高まってきた.

最も簡単な薄膜解析法はタングステンなどの試料を FIM 観察して半球状の清浄表面試料を得た後に、その針の 上に直接成膜する手法で、これによって Co-Cr 薄膜の濃 度変調が解析された例がある<sup>17)</sup>.しかし、FIM 用針状試料 の先端の半径は 50 nm 程度の半球であり、そのような特 殊な形状の基板に成膜された薄膜が実際の平板基板にさま ざまな条件で成膜されたものと同じ構造、組成をもつとは 考えられないので、この手法は極めて特殊な条件下でのモ デル実験に過ぎない.磁性薄膜で重要なのはナノ組織と磁 気特性の因果関係を明らかにすることであるので、針表面 に成膜された膜では磁気特性の評価が困難で、仮に測定で きたとしてもそれが平板基板で実現される特性とは大きく 異なると考えられる.

平板基板にスパッタ法で作製された Co-Cr 薄膜から針 状試料を作製するために、長谷川らは Fig.5 に示されるよ うなフォトリソグラフィーと電解研磨を併用した針状試料 作製法を開発した<sup>18)</sup>. これはヘッド製造用のリソグラ フィー法をそのまま転用したもので、膜厚と同じ幅をもっ たミクロ棒とそれをタングステンワイヤーで引き上げるた めの幅広のもちしろ部分からなる形状の試片である. この パターンをレジストに転写後、イオンミルでレジストの除 去されている薄膜部位を除去し、薄膜をパターン形状に加 工する. さらに基板からこらの試片をはがすために、基板 上にスパッタ成膜していた Cu バッファー層をクロム酸混 液で溶解除去する. Step 2 では基板上で自由になったパ ターン試片を 0.1 mm 経の銀ペーストを付着させたタング ステンワイヤーで引き上げ、それを精密電解研磨で針状に 仕上げるという一連の作業である. 複雑な工程であるが、 ルーチン化してしまえば一度に数千の試片を取り出すこと ができ、引き上げと電解研磨は数分程度の作業で行える. このような手法により Co-Cr 薄膜<sup>19</sup>、Fe-Ta-C 軟磁性 膜<sup>20)</sup>のアトムプローブ分析が行われた. 後には、同様の手 法で Co-Cr, Co-Cr-Ta 薄膜を 3DAP で解析することにも 成功している<sup>21), 22)</sup>.

リソグラフィー法による薄膜試料からの針状試料作製法 は平板基板の薄膜のアトムプローブ分析を可能にしたとい う点では大きな進歩であったが、リソグラフィー法の分解 能の制約から膜厚は1µm 程度でなければならないこと, さらに最終的に基板から試片をはがすために適当なバッ ファー層が必要など、実際の記録媒体や多層膜から試料を 作製するには不適当な方法であった。このようなリソグラ フィー法の欠点を解決するために、Larson らは Fig. 6 に 示されるような円環状の収束イオンビームを用いて針状試 料を微細加工する方法を開発し<sup>23)</sup>,これを上記のリソグラ フィー法で作製した試片に適応することにより [Cu/Co]n 多層膜の面内方向に 3DAP を行うことに成功した<sup>24)</sup>.3 DAP データは収集したすべてのイオンの質量と座標であ るので、データ収集後に任意の方位から濃度解析を行うこ とができる. そのため [Cu/Co] 多層膜の面内方向から収 集したデータからでも面直方向に濃度プロファイルを再現



**Fig. 5** Schematic illustration of the photolithography method to prepare a needle-like specimen from a thin film.<sup>16</sup>



**Fig. 6** Schematic illustration of the tip preparation method in the normal direction to the film plane using the annular focused ion beam technique.<sup>21, 24)</sup>

することができる. この方法を使って Larson らは多層膜 の面直方向の濃度プロファイルを得たが,実際には 3DAP 分析では原子が試料表面からイオン化する際に生じる蒸発 収差の影響により,位置情報の面内方向には 0.2 nm 程度 の誤差が生ずる. そのため Fig.4 に示されたような原子面 分可能を得るためには,多層膜の積層に垂直方向に試料を 作製しなければならない.

膜面に垂直方向に針状試料を作製する際、通常多層膜の 厚さは数十 nm に過ぎないので、多層膜上部から Ga イオ ンを照射すると実際の試料がミリングされてしまい解析部 位を試料先端に残すことが困難になる。そこで観察対象と なる膜に適当な厚さのコーティング層を付け、基本的には Fig. 6(b) に示される円環ビーム法で膜面に垂直に針を作 る. ただし平板膜に直接円環法で微細加工をして針を作っ ても、それをアトムプローブ試料として取り出すことがで きないので, Larson らは低抵抗 Si ウェーハーにリソグラ フィー法により Si ポストを大量に作製し、その上に多層 膜を成膜する手法を用いている<sup>25)</sup>. この手法では確かに膜 面に垂直な試料を作製できるが、膜がポストごとに不連続 になるために、実際の磁気測定を行った試料から針状試料 を作製することができない、繰り返しになるが、膜解析の 意義はナノ組織解析によって磁気特性変化を説明しようと することであり、実際に磁気測定や MR 測定を行われた試 料から FIM 試料を取り出して解析しなければ意味がない. そこで、最近では平板基板に実条件で成膜され磁気特性を 評価された膜から, ダイシングソーで Fig. 6(a) に示され たようなポストを作り、それを切り出してタングステンワ イヤーの先端に固定し、それを FIB で加工して針状試料を 作製する試みが行われている<sup>26)</sup>. また最近では FIB で微細 加工した試料片をタングステン針で引き上げるマイクロサ ンプリング法の進展により、平板基板薄膜の任意の領域か

ら直接 FIM 試料を作製することができるようになってき ており<sup>27)</sup>, このような新しい試料作製法の発展により, 3 DAP 法の応用範囲が薄膜解析だけではなく素子やデバイ スの任意領域からのナノ解析に飛躍的に広がるものと期待 されている.

### 4. 薄膜解析の例

膜面方向に試料を作製する際に Larson らは Fig. 5 に示 したフォトリソグラフィー法で作製した微小試片を FIB 加工したが<sup>24)</sup>,最近の FIB 装置ではビーム電流,加速電圧 を高くすることにより、高速加工が可能となってきている ので, 面内に針状試料を作製する際にはリソグラフィー法 を省略して直接針状試料を作製することが可能となってき ている. Fig. 7 は Si 基板上にメッキ法で成膜された FeCo 軟磁性膜であるが、大電流・高加速電圧 FIB により基板を 除去し、低電流・低電圧 FIB により実際のサンプルとなる 磁性層の加工を行っている、このように作製された試料の TEM 像, FIB 像と 3DAP による元素マップを Fig.8 に示 す<sup>28)</sup>. TEM 像からこの試料内部にナノサイズの結晶粒が 多量に含まれていることがわかる. FIM 像からも試料先端 に結晶粒界が含まれていることがわかる. 3DAP 解析の結 果, 結晶粒界で針の局所的な半径が変化するために Coの 密度が見かけ上異なって観察され,そのため結晶粒界の位 置が原子の密度の高い部分として観察されている、その部 分にSまたはOが偏析していることがわかり,導電剤と してメッキ浴に加えられる試薬から不純物が結晶粒界混入 し、これが飽和磁束密度を下げる原因になっていることが わかった.

Fig. 9 は Larson らによる [(Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> 5 nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> 4 nm)/(Cu 3 nm)/(Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>)]<sub>n</sub> 多層膜の解析例である<sup>29)</sup>. データはおおよそ 20 nm (20 nm の領域から深さ 35 nm



**Fig. 7** FIB microfabrication procedure to prepare needle-like specimen from a thin film deposited on a flat substrate.



**Fig. 8** (a) TEM image of needle-like specimen prepared from an electroplated FeCo thin film as shown in Fig. 8, (b) FIM image, and (c) 3DAP elemental maps obtained from the specimen.



**Fig. 9** 3 DAP reconstruction of a NiFe/CoFe/ Cu-based multilayer thin film and enlarged section showing (111) planes across the NiFe/ CoFe interface. The dimensions of the reconstructed volume are approximately 20 nm  $\times$  20 nm  $\times$  35 nm. Reprinted with permission from ref. 27, D. J. Larson *et al.*: *J. Appl. Phys.*, **77**, 726 (2000). © 2000, American Institute of Physics.

で収集されており、元素マップから多層膜の積層の一部が 再現されている様子がわかる. 界面部分の原子配列が拡大 して示されているが, 深さ方向に (111) 面が分解されてい る様子がわかる. この解析から NiFe が CoFe の上に積層 される場合よりも、CoFe が NiFe 層の上に積層される場 合の方が界面での濃度変化が広がることが実験的に示され た.これは分子動力学でも予測されている結果と一致して いる. Larson らはこのほかにも多くの多層膜の 3DAP 解 析を行っており、主として成膜条件によって異なる界面の 急峻さの評価や成膜中の酸素が膜構造に及ぼす影響などを 報告しており<sup>30), 31)</sup>,一連の結果を Overview としてまと めている<sup>32)</sup>. しかしこれらの研究はあらかじめリソグラ フィー法により作製された Si ポストの平板基板の上に成 膜した試料の解析であり,解析結果から明らかとなったナ ノ構造と磁気特性との対応がなされていない、今後の課題 は、実際に磁気特性評価を行った試料から針状試料を作製 し、それを 3DAP で解析することにより、ナノ組織と磁気 特性の関係を解明することである、さらには、実際に素子 化した試料の界面を含む部位から針状試料を作製して、そ れを3DAP解析することにより実素子のナノ解析を行う ことである. そのためには、マイクロサンプリング法を用 いて素子の任意箇所から試料作製を行える技術を確立する 必要がある.

#### 5. 3DAP の将来展望

3DAPでは原子のイオン化に電界蒸発を使っている. パ ルス電圧で蒸発のタイミングを取るためにエネルギー欠損 による質量分解能低下,さらに深刻な問題となるのが電界 応力による試料破壊である.後者は一般の解説や教科書で あまり述べられていないので,アトムプローブ法の経験の ない者は,針状試料さえできれば分析が可能だと考えがち である.しかし,原子をイオン化させるのに必要な電界に

日本応用磁気学会誌 Vol. 29, No. 4, 2005

よる応力は通常の材料の降伏点以上となり,分析初期,さ らには分析中に頻繁に試料破壊が起こる.これがアトムプ ローブ分析を難しくしている最大の問題である.また分析 領域は試料と検出器間の距離で変わるが,質量分解能を維 持するためにはリフレクトロンが必要で,このために検出 器の開口角は8°程度にしかならない.そのため通常の3 DAPで分析できる領域は20 nm×20 nm 程度の限定され た領域で,これではスピンバルブなどの素子の3次元解析 には不足である.開口角を広げるためには試料・検出器間 距離を短くすればよく,最近商品化されたImago社の局 所電極アトムプローブ(LEAP)で広領域が分析できるのは これが理由である<sup>8)</sup>.この装置では最大で100 nm×100 nm 程度の広領域からのサンプリングも可能である.しか し直線型で飛行距離を短くすると質量分解能が落ちてくる ので,開口角(分析領域)と質量分解能は相反する.

質量分解能、分析領域、電界による試料破壊という三つ の制約を一挙に解決する可能性のあるのがレーザー補助広 角 3 次元アトムプローブ (Laser Assisted Wide Angle 3D Atom Probe, LAWAP) である. 原子の電界蒸発が起こる 直下の定常電圧を試料にかけておき、電界蒸発をフェムト セカンドレーザーパルスで誘起させる. イオンのエネル ギーは eV<sub>dc</sub>となり、エネルギー欠損が起こらないので直 線型であっても質量分解能高く維持しつつ、試料・検出器 間距離を短縮できる. さらに高電圧パルスを繰り返し試料 にかける必要がないので, 試料破壊の可能性が小さくな り、アトムプローブ分析法最大の問題が解決できる. 最近 ルーアン大のグループはフェムトセカンドレーザーを通常 の電圧パルスにかえて 3DAP 分析を行い,電圧パルスに より駆動したアトムプローブと全く同じ質の 3DAP デー タが取得できることを確認している<sup>32)</sup>. パルスレーザーに よるアトムプローブは 1982 年に Tsong ら<sup>33)</sup>が半導体分 析に応用しているので新しい概念ではないが、従来のレー ザーアトムプローブは ns パルスを使っていたので、電界 蒸発が熱により活性化されていた.一方,フェムトセカン ドレーザーにより誘起されるイオン化は熱励起によるもの ではなく、レーザーによる電界の効果であるとされてい る<sup>32)</sup>. そのため原子はイオン化の際に表面で拡散すること なく蒸発するので、位置情報も通常の電界蒸発と同じよう に保たれる. レーザー補助アトムプローブが開発される と、試料破壊の可能性が低減されアトムプローブ分析法が 非常に使いやすい方法になる可能性があるばかりでなく, 広領域アトムプローブの可能性, TMR 素子などの高電気 抵抗材料の解析も可能になると期待されている。さらに半 導体や場合によっては非導電性材料の分析の可能性も広 がってくるので、3DAPの応用範囲が飛躍的に拡大するか もしれない。筆者らのグループでもレーザー補助広角アト ムプローブの開発に取り組もうとしている.

謝辞 本稿はアトムプローブ法の薄膜解析への応用と いう最新の動向についての解説である。そのため筆者らの データだけでなく,他グループのデータも多く用いた. Imago Scientific Instruments の D. Larson 博士には図の 再使用を快く許可いただいたことに感謝する。また未発表 のデータの使用を許可いただいた富士通の三宅裕子博士,

薄膜解析で筆者らとともに苦労を分かち合っている東芝の 金野晃之博士に謝意を表する.

#### References

- 1) E. W. Müller, J. A. Panitz, and S. B. McLane: Rev. Sci. Instrum., 39, 83 (1968).
- 2)A. Cerezo, T. J. Godfrey, and G. D. W. Smith: Rev. Sci. Instrum., 59, 862 (1988).
- 3) D. Blavette, B. Deconihout, A. Bostel, J. M. Sarrau, M. Bouet, and A. Menand: Rev. Sci. Instrum., 64, 2911 (1993)
- 4) A. Cerezo, T. J. Godfrey, J. M. Hyde, S. J. Sijbrandij, and G. D. W. Smith: Appl. Surf. Sci., 76/77, 374 (1994).
- 5) B. Deconihout, L. Renaud, G. Da Costa, M. Bouet, A. Bostel, and D. Blavette: Ultramicroscopy, 73, 253 (1998).
- 6) O. Jagutzki, A. Cerezo, A. Czasch, R. Dorner, M. Hattass, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann, K. Ullmann-Pfleger, T. Weber, H. Schmidt-Bocking, and G. D. W. Smith: IEEE Trans. Nucl. Sci., 49, 2477 (2002).
- 7) http://www.cameca.fr/
- 8) http://www.imago.com/imago/
- 9) http://www.oxfordnanoscience.com/
- 10) K. Hono and T. Sakurai: J. Magn. Soc. Jpn., 18, 15 (1994).
- 11) K. Hono: J. Magn. Soc. Jpn., 24, 1229 (2000).
- 12) A. Cerezo, T. J. Godfrey, S. J. Sijbrandij, G. D. W. Smith, and P. J. Warren: Rev. Sci. Instrum., 69, 49 (1998).
- 13)X. Y. Xiong, T. Ohkubo, T. Koyama, K. Ohashi, Y. Tawara, and K. Hono: Acta Mater., 52, 737 (2004).
- 14) K. Hono: Prog. Mater. Sci., 47, 621 (2002).
- 15) K. Hono and M. Ohnuma: in "Magnetic Nanostructures," ed. by H. S. Nalwa, American Scientific Publishers, 2002.
- 16) H. Fukuzawa, H. Yuasa, K. Koi, H. Iwasaki, Y. Tanaka, Y. K. Takahashi, and K. Hono: J. Appl. Phys., in print.
- 17) K. Hono, Y. Maeda, J-L. Li, and T. Sakurai: Appl. Surf. Sci., 67, 386 (1993).
- 18) N. Hasegawa, K. Hono, R. Okano, H. Fujimori, and T. Sakurai: Appl. Surf. Sci., 67, 412 (1993).
- 19) K. Hono, Y. Maeda, S. S. Babu, and T. Sakurai: J. Appl. Phys., 76, 8025 (1994).
- 20) K. Hono, N. Hasegawa, S. S. Babu, H. Fujimori, and T. Sakurai: Appl. Surf. Sci., 67, 391 (1993).
- 21) K. Hono, K. Yeh, Y. Maeda, and T. Sakurai: Appl. Phys. Lett., 66, 1686 (1995).
- 22) J. Nishimaki, K. Hono, N. Hasegawa, and T. Sakurai: Appl. Phys. Lett., 69, 3095 (1996).
- 23) D. J. Larson: D. T. Foord, A. K. Petford-Long, H. Liew, M. G. Blamire, A. Cerezo, and G. D. W. Smith: Ultramicrosсору, 79, 287 (1999).
- 24) D. J. Larson, A. K. Petford-Long, A. Cerezo, and G. D. W. Smith: Acta Mater., 47, 4019 (1999).
- 25) D. J. Larson, B. D. Wissman, R. L. Martens, R. J. Viellieux, T. F. Kelly, T. T. Gribb, H. F. Erskine, and N. Tabat: Micros. Microanal., 7, 24 (2001).

- 26) T. Kinno: Private communication.
- 27) M. H. F. Overwijk, F. C. van den Heuvel, and C. W. T. Bulle-Lieuwma: J. Vac. Sci. Thechnol., B11, 2021 (1993).
- 28)Y. K. Takahashi, K. Hono, Y. Miyake, D. Kaneko, and H. Kanai: to be published.
- 29) D. J. Larson, P. H. Clifton, N. Tabat, A. Cerezo, A. K. Petford-Long, R. L. Martens, and T. F. Kelly: Appl. Phys. Lett., 77, 726 (2000).
- 30) D. J. Larson, A. Cerezo, P. H. Clifton, A. K. Petford-Long, R. L. Martens, T. F. Kelly, and N. Tabat: J. Appl. Phys., 11, 7517 (2001).
- 31) D. J. Larson, A. K. Petford-Long, A. Cerezo, S. P. Bozeman, A. Morrone, Y.Q. Ma, A. Georgalakis, and P.H. Clifton: Phys. Rev. B, 67, 144420 (2003).
- 32)D. J. Larson, A. K. Petford-Long, Y. Q. Ma, and A. Cerezo: Acta Mater., 52, 2847 (2004).
- 33)T. F. Kelly and A. A. Gribb: Microscopy Today, September/October, 8 (2003).
- 34) B. Deconihout, F. Vurpillot, B. Gault, G. Da Costa, M. Bouet, A. Bostel, D. Blavette, A. Hideur, G. Martel, and M. Brunel: Surf. Inter. Analysis (2005), in press.
- 35) T. T. Tsong, S. B. McLane, and T. J. Kinkus: Rev. Sci. Instrum., 53, 1442 (1982).

#### (2004年12月18日受理)



#### 宝野和博 ほうの かずひろ

1988 ペンシルベニア州大学院金属工学 科 Ph. D., 同年 カーネギーメロン大学材 料科学科ポスドク,1990 東北大学金属材 料研究所助手, 1995 科学技術庁金属材料 技術研究所主任研究官, 1998 同物性解析 研究部第3研究室長,2002 物質・材料 研究機構材料研究所ナノ組織解析グループ ディレクター,2004 物質・材料研究機構 フェロー,現在に至る. 專門 金属材料 (工博)



#### 大久保忠勝 おおくぼ ただかつ

1989 長岡技術科学大学大学院創造設計 工学専攻修士課程修了,同年 日本電気株 式会社メモリ事業部,1992 長岡技術科学 大学機械系助手, 1994 大阪大学産業科学 研究所助手,2002 物質·材料研究機構材 料研究所ナノ組織解析グループ主任研究 員,現在に至る. **専門** 金属材料 博士(工学)

高橋有紀子 たかはし ゆきこ 2001 東北大学大学院電子工学専攻,同年 物質・材料研究機構物性解析研究グループ ポスドク,2002 日本学術振興会科学技術 特别研究員,2005 物質•材料研究機構材 料研究所ナノ組織解析グループ研究員,現 在に至る. **専門** 磁性薄膜 博士(工学)

日本応用磁気学会誌 Vol. 29, No. 4, 2005