

解説

走査型熱顕微鏡による微小スケール熱計測

中別府 修

(受取日：2000年11月20日，受理日：2000年12月11日)

Microscale Thermal Measurement by Scanning Thermal Microscopy

Osamu Nakabeppu

(Received November 20, 2000; Accepted December 11, 2000)

The Scanning Thermal Microscopy (SThM) has been developed since 1986 by adding a temperature detective function with various techniques to the Scanning Tunnel Microscopy (STM) or the Atomic Force Microscopy (AFM). The SThM can measure temperature and thermal properties distribution with spatial resolution of less than 100 nm. The remarkable improvement in the spatial resolution for thermal measurements will enable direct thermal observation of sub-micron structures, such as micro-electric devices, ICs, composite materials, and local catalytic reactions. This review introduces the present state and features of various types of SThM, and then gives a detailed description of a promising SThM with a thermocouple cantilever probe. Furthermore, an active method for the accurate real temperature measurement with high spatial resolution is introduced.

1. はじめに

SThM (Scanning Thermal Microscopy, 走査型熱顕微鏡法) とは SPM (Scanning Probe Microscope, 走査型プローブ顕微鏡) に温度計測機能を付加し数 10 nm 以下の高い空間分解能で試料の温度や熱物性値の分布を計測する手法である。

従来の微小スケール熱計測が赤外放射¹⁾や集光したレーザーの反射²⁾ ラマン散乱³⁾等を利用する遠視野光学的な手法であるのに対し，SThM は針状プローブ先端と試料の微小な接触部を通じて熱情報を計測する近接型であり，ベースとなる STM (Scanning Tunnel Microscope, 走査型トンネル顕微鏡) や AFM (Atomic Force Microscope, 原子間力顕微鏡) の高分解能形状計測機能を利用し，高い空間分解能で熱計測を実現するものである。

サブミクロンスケールの空間分解能を持つ温度や熱物性

値の計測が必要とされる背景には，マイクロエレクトロニクスや微細加工技術の進展による微小なデバイスの登場が挙げられる。例えば，集積回路の中では既に配線幅やトランジスタの大きさが光の波長よりも小さな 0.2 ミクロン以下の大きさと製作されており，従来の計測法では温度分布や発熱状態を直接計測することが不可能になっている。電子デバイスの高集積化や微小化による発熱密度の上昇が動作不良や短寿命化につながる懸念があるため，熱的な診断を行うには 0.1 ミクロン以下の分解能が要求される。また，微小な電子デバイスや光デバイスを設計する基礎資料として薄膜や異種材料境界部の熱物性値が必要とされるが，その計測技術は未確立であり，新たな極微小スケール熱計測法の開発が望まれている。

SThM のベースとなる SPM は，STM⁴⁾ が 1982 年に，続いて AFM⁵⁾ が 1986 年に発明されてから，物理学，化学，生物学，工学等の分野で広く利用されてきた。SPM の成功は，

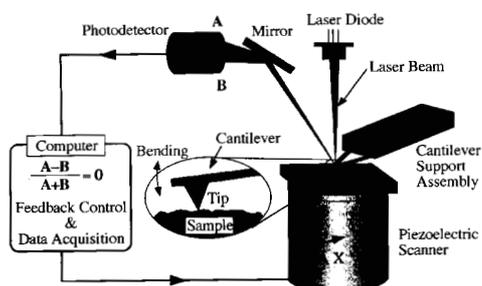


Fig.1 AFMの原理図

フィードバックを利用してプローブ先端と試料間の近接領域で働く現象を安定に検出し原子スケールの空間分解能を実現したこと、その広い拡張性⁶⁾にある。

特に、AFMでは鋭いプローブの先端と試料表面との間に作用する原子間力を柔らかなカンチレバー（片持ち梁）の撓みで検出し、 piezoelectric アクチュエータによるフィードバック位置制御を用い、固体試料の表面形状を大気中、真空中、液中といった様々な環境下で観察することが可能である。⁷⁾ Fig.1にAFMの原理図を示すが、現在、力の検出にはカンチレバーの撓みを背面で反射したレーザー光の変位で測る「光てこ方式」が主流であり、また、形状計測にはバネ常数 0.1 N/m 程度のカンチレバーを $100 \text{ pN} \sim 10 \text{ nN}$ 程度の荷重で接触させて走査する接触モードがよく利用されている。拡張性に関しては、例えば、カンチレバーに磁性体を塗布し磁気力を測る、導電性カンチレバーと試料に電界を付与し静電気を測る、また、電気伝導度分布を測る、カンチレバーの軸周りのねじれから摩擦力を測る、カンチレバー先端を特定の原子や分子官能基で化学修飾し試料の分子種を同定したり分子同士の結合力⁸⁾を計測する、という手法が実用化されている。

現在、S_{Th}Mとして報告されているものは、STMを利用し接触部の電気化学ポテンシャルを計測する接触ポテンシャル型、AFMに微小な熱電対カンチレバーを装着した熱電対型、既に市販機が登場している微細な電気抵抗を利用したRTD (Resistance Temperature Device) 型、温度変化によるカンチレバーの撓みを利用した熱変形型、試料の熱膨張を利用する熱膨張型、SNOM (Scanning Near-field Optical Microscopy, 走査型近接場光顕微鏡) を利用した光学型に大別することができる。著者らは、適応範囲の広さ、空間分解能の高さ、温度計測における将来性から、熱電対型S_{Th}Mが有望であると考え、主にその基礎的な研究開発を行ってきた。

本稿では、まず、種々のS_{Th}Mの原理、計測手法、性能を概説し、続いて、熱電対型S_{Th}Mによる熱計測の実際をカンチレバー、伝熱特性、性能、計測例を通して解説する。

さらに、数 10 nm の空間分解能が報告されるようになった熱電対型S_{Th}Mの次の課題として、微小スケールでの正確な温度計測に関する新たな取り組みを紹介する。

2. 種々のS_{Th}M

最初の熱的なSPMは1986年に報告されたScanning Thermal Profiler⁹⁾であり、試料に近接させた加熱探針の温度変化を絶縁体の形状計測に利用したものである。続いて'89年にSTMを利用し金属探針と金属試料表面の起電力を測ることでナノスケールでの光熱変換顕微測定法および光熱変換分光法が示された。¹⁰⁾ '92年には、接触ポテンシャルを利用した熱伝導性の計測¹¹⁾ '93年には微細熱電対カンチレバーを用いた電子デバイスの温度分布計測¹²⁾ '94年にはWollastonワイヤーを利用したRTDカンチレバーによる熱伝導率分布計測¹³⁾ '95年にバイモルフカンチレバーの熱変形による温度計測¹⁴⁾が報告されている。これ以降、熱電対型やRTD型ではセンサー部の薄膜化や微小化による計測性能の向上が行われてきた。また、'97年には先鋭化したガラスファイバーを探針とし先端から滲み出す近接場光（エバネッセント光）の試料表面での散乱強度から温度分布を計測する光学型手法¹⁵⁾が、'98年には試料の熱膨張から温度計測を行う熱膨張型¹⁶⁾のS_{Th}Mが報告されている。

これら接触ポテンシャル型、熱電対型、RTD型、熱変形、熱膨張型、光学型の特徴をTable 1にまとめて示し、以下にそれぞれを概説する。

2.1 接触ポテンシャル型

STMの初期の多機能化の一つであり、トンネル電流が検出される距離まで近接させた金属探針と導電体試料間の熱起電力（接触ポテンシャル、トンネル熱起電力）を計測し微小点の熱計測を行う。照射光の選択的吸収によるナノスケールで起こる局所的な温度上昇の検出に利用され、フォトサーマル計測の究極的な空間分解能 (1 nm) を示した例¹⁰⁾ や探針を加熱し接触部の温度変化を測ることで試料の熱伝導率分布を計測した例¹¹⁾が報告されている。

2.2 熱電対型

熱電対型では、 $\phi 75 \mu\text{m}$ 程度の細線熱電対¹²⁾をそのままカンチレバーとして利用したり、先鋭化した金属細線に薄膜をコートし先端部に熱電対接点を形成したもの、市販カンチレバーに2種類の金属薄膜をコートしたもの、市販カンチレバーの針先に $1 \mu\text{m}$ 以下の熱電対接点を作ったもの等が報告されている。熱電対信号の計測には、直接DCアンプで増幅するか、試料の加熱にモジュレーションを行いロックイン計測する手法が利用されている。性能としては、大気の影響を排除したり熱電対接点の微小化を行うことで、試料表面の温度分布および熱伝導率等の熱物性値分布を、空間分解能 $100 \sim 10 \text{ nm}$ 、時間応答性 1 kHz で計測可能であるとされている。

Table 1 種々のSThMの特徴

タイプ (装置)	計測原理・方法	プローブ・ センサー	空間 分解能	応答時間	温度精度	プロー ブ製作	問題点	備考
接触 ポテンシャル 型 (STM)	近接したプローブ・試 料間の電気化学ポテン シャル	導電性プローブ	1 nm	1 ms	10 mK	易	導電体, 物性値依 存, 温度較正	
熱電対型 (AFM)	熱電対接点付きカンチ レバーを試料に接触	ナノ接点TC 細線/薄膜TC 細線TC	10 nm 100 nm ^(v) 500 nm ^(a)	10 ms ^(v) 300 ms ^(v) 50 ms ^(a)	2 mK ^(v) 20 mK ^(v) 100 mK ^(v)	難 易 易	接触状態, 物性値が 計測温度に影響	
RTD型 (AFM)	試料に接したカンチレ バー上の電気抵抗変化	薄膜RTD 細線RTD	--- 1 μm ^(a)	--- ---	--- 1 mK	難 中	接触状態, 物性値が 計測温度に影響	市販装 置あり
熱変形型 (AFM)	交流発熱試料に接した カンチレバーの熱変形	バイメルフ カンチレバー	300 nm ^(v)	100 ms ^(v)	---	易	接触状態, 物性値が 計測温度に影響 交流温度のみ	市販品 利用可
熱膨張型 (AFM)	交流加熱した試料の熱 膨張	市販カンチ レバー	10 nm ^(a)	1 ms ^(a)	0.1 K ^(a)	無	熱膨張率, 試料の構 造データが必要	市販品 利用
光学型 (SNOM)	試料の反射率変化を近 接場光の散乱で計測	光ファイバー プローブ	50 nm	< 1 ms	---	中	熱膨張と反射率変化 の分離, 温度較正	

注 --- : は未報告につき不明, (v) : 真空中, (a) : 大気中, ハッチングのある欄は著者の試算による

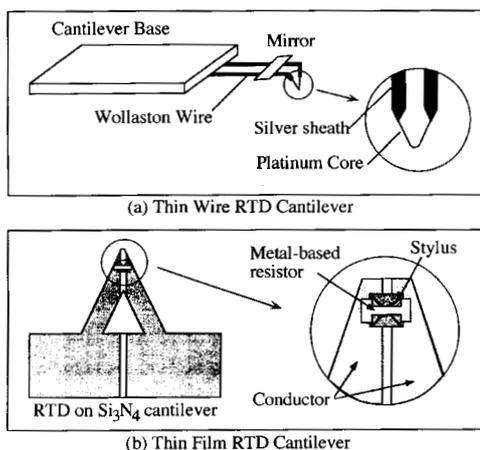


Fig.2 RTD カンチレバー, (a) 細線式, (b) 薄膜式

試料表面温度の計測精度は、試料・カンチレバーの物性ととの構造、両者の接触状態に大きく左右され、試料の実温度を正確に測定することが残された課題である。

2.3 RTD 型

RTD (Resistance Temperature Device) 型のSThMは既にSPMメーカーより市販されている。細線式 (Fig.2(a)) はWollastonワイヤーと呼ばれる銀の鞘を持つ直径5 ~ 10 μmの白金細線をカンチレバーとして利用し、その電気抵抗の変化から試料の温度や熱物性値の分布を計測する。また、カンチレバー自身を発熱させることが可能であり、一定発

熱量に対する温度変化や発熱量を変化させて温度変化を調べることで局所的な物性値や相転移の状態が計測できる利点を持っている。薄膜式 (Fig.2(b)) では、Si₃N₄カンチレバー先端に金属抵抗膜を取り付け、同様に温度や物性値の分布を計測可能としている。メーカーのホームページ¹⁷⁾にデモイメージが掲載されている。性能としては、空間分解能が1 μm程度と報告されている。

2.4 熱変形型

試料に接したカンチレバー自身の温度変化による熱変形から試料の温度を計測する手法¹⁴⁾である。カンチレバーのバイメタル効果による熱変形は形状計測に対しドリフトや歪みを生むため、AFMには本来否定的な要素であるが、これを逆に積極的に利用したものである。市販の片面金コートSi₃N₄カンチレバーをそのまま利用できる利点があり、感度の向上には金属薄膜の追加蒸着が行われる。具体的には、100 Hz程度の周波数で試料を交流加熱し、温度変動によるカンチレバーの熱変形を、形状計測用のレーザーの変位信号からロックイン法で検出することで形状情報と温度情報を分離し同時計測を行う。カンチレバー全体の温度変化により計測を行うため、熱容量が大きく試料との接触が不十分だと応答が低下する性質がある。接触条件が一定の下では、熱変形信号の温度に対する線形性が示されているが、走査して得たイメージは定性的な熱イメージとならざるを得ない。

2.5 熱膨張型

試料の温度変化が試料自身の熱膨張を引き起こすことに注目し、Fig.3に示す走査型ジュール熱膨張顕微鏡¹⁶⁾と称し

走査型熱顕微鏡による微小スケール熱計測

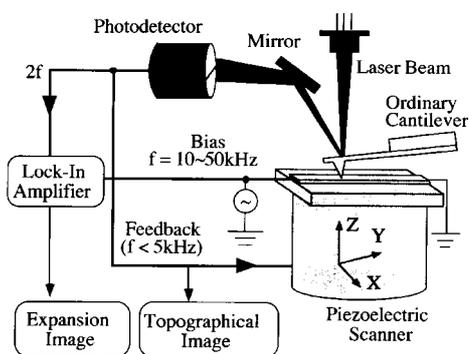


Fig.3 走査型ジュール熱膨張顕微鏡の原理

たS_{Th}Mが提案されている。この手法は、AFMのサブオンギストロームに及び高い垂直変位計測能力を利用し、僅かな熱膨張から熱情報を計測するもので、この場合にも、試料に交流発熱を起こさせ、試料表面が僅かに上下に変動する量をカンチレバーの垂直変位信号からロックイン計測で抽出する。ここで、加熱周波数はカンチレバーの機械的共振周波数と形状計測のフィードバックループの応答周波数の間（例えば20 kHz）に設定することで、試料の熱膨張を形状情報と分離して計測できる。プローブの加工や特別な工夫を利用せずに熱イメージを得られる利点を持つが、得られた熱膨張信号から温度変化への変換には、試料の温度変化する領域の厚さ、熱膨張率、他の領域との応力バランス等を明確にする必要があり、温度の直接計測は困難である。このため、試料表面に一樣な厚さで既知の熱膨張率の樹脂層をコートすることが提案されている。

2.6 光学型

光を利用したSPMには、SNOM^{18,19}(Scanning Near-field Optical Microscopy)と呼ばれる手法がある。先鋭化した光ファイバー先端部に直径数10 nmの開口を持たせ周囲を金属膜でコートし、ファイバー端部からレーザーを入射すると開口部に近接場光(エバネッセント光)が現れる。試料表面にプローブを近接させると、エバネッセント光が散乱され、その散乱光を検出することで、光の波長以下の分解能で形状、光学的特性が計測される。

SNOMによる熱計測では固体の反射率が温度に依存することを利用する。Fig.4に示すように、開口50 nmの光ファイバープローブで、VLSI回路の配線交差部の熱イメージを計測した例¹⁵⁾が報告されている。SNOMで検出する散乱光の強度はプローブ、試料の間隔に強く依存するため、温度変動が試料の熱膨張を引き起こすと、反射率の変化に機械的変形による変化が重畳されてしまう。この例では、高い周波数帯の加熱に対しては機械的変形の影響が小さいことを見出し、高周波数のモジュレーションにより反射率変

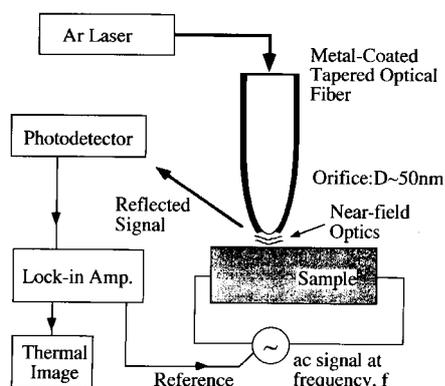


Fig.4 光学型S_{Th}M (SNOMによる温度計測)

化を捕らえる工夫がなされている。高速、高空間分解能な計測が可能なる手法であるが、表面の光学物性の変化のみを検出することが難しいことと、計測値のキャリブレーションが困難であるという性質の計測法である。

3. 熱電対型S_{Th}Mによる熱計測の実際

種々のS_{Th}Mにはそれぞれ長所、短所があるが、著者が主に研究対象としている熱電対カンチレバーを用いたS_{Th}Mには、計測対象が電気的特性や光学的特性で制限されない、センサー部を微小化できる、計測系が単純である、後述する能動型計測により温度精度の向上が可能であるという長所がある。ここでは、熱電対型S_{Th}Mによる微小熱計測の実際を、具体的なカンチレバーデザイン、計測システム、カンチレバーと試料間の熱伝達特性と計測性能、幾つかの計測例を示すことで紹介する。また、カンチレバーを試料に接触させて温度を測る受動型計測に基づく問題点と著者らの考案したその解決法に関して説明する。

3.1 カンチレバーデザイン

高い分解能での位置決めや走査は本来AFMが持つ機能を利用し実現されるため、S_{Th}M研究の初期段階から最も重要であったのは、いかに感度の高い熱電対カンチレバーを製作するかという点である。これまで、Fig.5に示す様に、熱電対カンチレバーとしては手製の細線型、薄膜型、細線/薄膜型、ナノ接点型、そして微細加工プロセスによるバッチ式(batch fabrication)カンチレバー等が報告されている。

細線型¹²⁾はK型熱電対の素線(φ75 μm)の先端を電気化学エッチングにより先鋭化し、スポット溶接の後、再びエッチングを行い約25 μmの大きさの熱電対接点を形成したものである(Fig.5(a))。実顕微鏡下での一連の操作により達成したもののだが、この接点サイズでも試料・プローブ間の10 nm程度の接触点部の熱抵抗には大きなもので、応答時間は1~10秒程であった。S_{Th}Mで最初に電子デバ

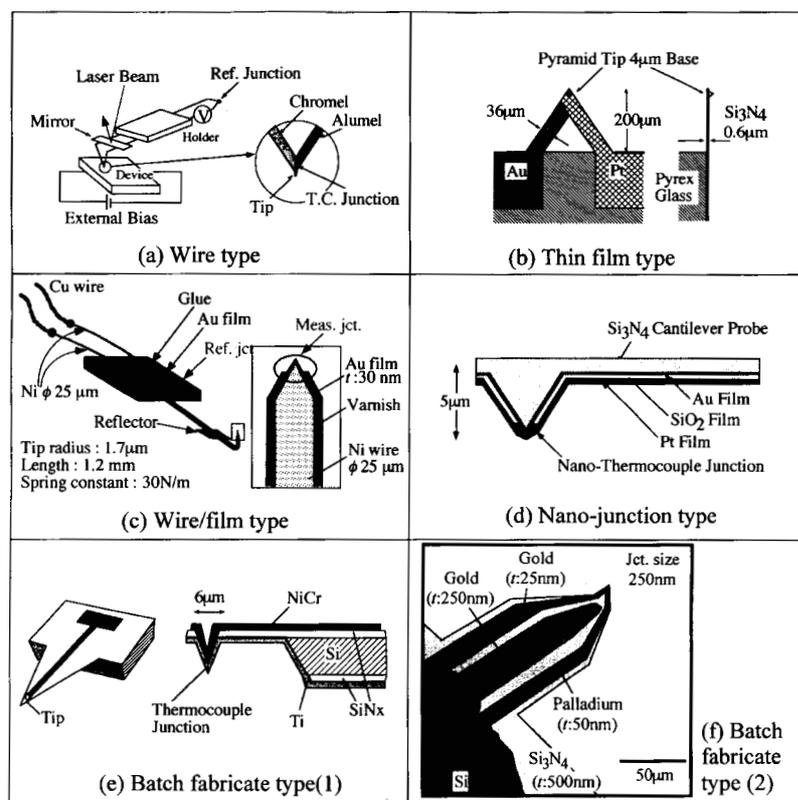


Fig.5 種々の熱電対カンチレバー

スの表面温度イメージを計測したのがこのプローブである。

熱電対接点のサイズを小さくし熱容量を低下させることが、応答速度と計測感度の上昇につながるため、薄膜型²⁰⁾では市販の逆V字型のSi₃N₄カンチレバーのそれぞれの足に金と白金を蒸着し先端部に熱電対接点を形成したものである (Fig.5(b))。真空中で試料の30 Hz程度の温度変動に追従する性能を示していたが、製作に伴う残留応力による変形や破損が多数生じるなど製作が困難であり、また静電気や摩擦に弱い欠点も持っていた。

筆者の製作した細線/薄膜型^{21,22)}カンチレバーは、φ25 µmのニッケル細線を0.1 NのHCl水溶液中で電気化学エッチングにより先鋭化し、熱硬化性樹脂 (Uワニス、宇部興産) で被覆し、樹脂の硬化後に、イオンパタリングで金の薄膜を30 ~ 50 nmの厚さで蒸着したものである (Fig.5(c))。樹脂を被覆すると先端部は表面張力効果で自然とニッケルが露出し、5 ~ 10 µmの大きさの熱電対接点が形成される。カンチレバーの全長は約1 mmでありバネ常数は1 ~ 30 N m⁻¹と見積もられ、先端曲率半径は約1 ~ 2 µmである。また、反射板として金を蒸着した10 µmの厚さのガラス片をカンチレバーに接着してある。細線型に比べ小さな熱

電対接点が先端部に製作でき、比較的丈夫であるため、手作業で製作している割に使い勝手の良いプローブであった。

ナノ接点型²³⁾はこれまで報告された中で最小の熱電対接点を持つものである (Fig.5(d))。市販のSi₃N₄カンチレバー上に金、酸化シリコン、ニッケルの3層の薄膜を蒸着し、約5 µmのピラミッド型探針の先端部に100 ~ 300 nmの大きさの熱電対接点を形成したものである。製作の困難さと耐久性に問題があるものの、このプローブにより温度計測に関して10 nm程度の空間分解能を実現可能であると報告されている。

従来、熱計測用のカンチレバーやセンサーは個々に作られ、その製作には時間を費やし、完成度は偶然性と製作者の器用さに依存したものとなる。また、微細熱電対は起電力がバルクのものとはしばしば異なる (例えば、薄膜型 (金/白金): 標準値7.5 µV K⁻¹, 実測値8.6 µV K⁻¹, 細線/薄膜型 (金/ニッケル): 標準値17 µV K⁻¹, 実測値20.1 µV K⁻¹, ナノ接点型 (金/ニッケル): 標準値17 µV K⁻¹, 実測値14 µV K⁻¹)。このため、プローブ個々の特性評価を必要とする。特性の定まった多数のカンチレバーの供給によりSThMの利便性を向上させるべく、微細加工技術による一括製造 (パッチ式) で作られる熱電対カンチレバー

(Fig.5(e, f)) が報告されている。^{24,25)} Fig.5(f)に示すものは、厚さ 500 nm の Si_3N_4 カンチレバー上に金とパラジウムの薄膜を蒸着し先端部におよそ 250 nm 程度の大きさの熱電対接点を形成したもので、先端の曲率半径は約 50 nm であり、熱計測の空間分解能として 40 nm 以下という結果を示している。

また、細線型を除き、これらのプローブはカンチレバーベース上に参照接点を持っており、カンチレバー先端部とベースの温度差が計測されている。これにより環境温度のドリフトをキャンセルでき、計測感度の低いプローブでも熱画像が得られたり、微小な領域内の僅かな温度差を計測するというに役立っている。

3.2 計測システム

熱電対型 SThM は AFM をベースにしているが、市販の汎用機を利用するケースが多い。著者らは SII 社製の SPM3700 + SPA300 および Digital Instrument 社の Nano-Scope III を使用して研究を行ってきたが、これらの AFM は外部入力ポートを有するため、熱電対カンチレバーの信号を取り込み、形状画像と熱画像の同時計測を容易に行うことができる。また、熱計測では計測環境を低圧にする必要が生じることがあるが、これらの AFM は、 10^{-5} Torr 程度まで減圧した状態で動作させることが可能であった（メーカーの動作保証はない）。

温度計測には熱電対信号を安定した直流アンプで増幅し計測する通常の方法と、試料を交流加熱しその周波数成分のみをロックインアンプで増幅する方法が採られている。熱電対接点が十分に小さく応答時間や計測感度が十分であれば DC 計測を選択し、ノイズが大きい場合やカンチレバー背面で反射する撓み検出用レーザーの熱入力が大乱となる場合などには、ロックイン計測が利用される。

3.3 プローブ・試料間の熱伝達と計測性能

熱電対型 SThM では、カンチレバーを試料に接触させ、試料の熱情報をカンチレバー上の熱電対接点で検出する。熱電対接点の温度は試料とカンチレバーベースの温度を接触熱抵抗とカンチレバーの熱抵抗で内分した値となるため、計測値は熱バランスの仕方に依存する。このことは熱電対接点の感じる温度が試料温度の高低と接触熱コンダクタンスの大小、プローブ構造に依存し、結果の解釈や空間分解能、温度計測精度、応答速度の評価にもプローブ・試料間の熱伝達が重要であることを意味する。このため、試料に探針が接触している状態でどのような熱輸送が生じるか、計測性能とどのように関係するかを明らかにすることが重要である。^{21,26,27)}

Fig.6 にプローブ先端と試料の接触部の模式図を示す。両者の間の熱輸送経路としては、接触点部を通しての固体内の熱伝導、周囲のガスを通しての気体の熱伝導、固体表面

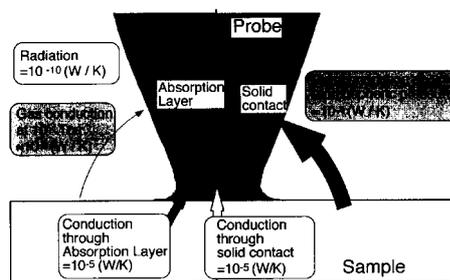


Fig.6 カンチレバー先端と試料間の熱伝達

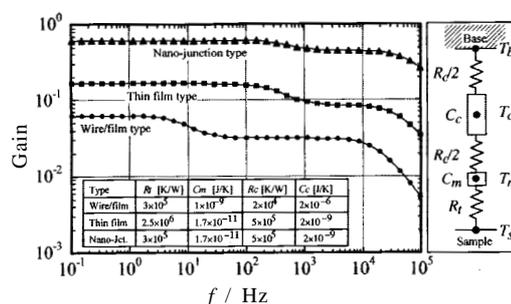


Fig.7 カンチレバー・試料系の熱伝モデルと周波数応答

の吸着膜（主に水の薄膜）を通しての熱伝導が挙げられる。放射による熱輸送はこれまで実験的に検出された例がなく、試料温度が 100 程度の状況では無視できると考えられる。プローブ上の温度検出部の大きさを $5 \mu\text{m}$ 、試料とプローブの熱伝導率を $100 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ （金属）、固体・固体の直接接触面を半径 10 nm の円、固体表面の水の吸着膜の厚さを大気圧下、湿度 50% に相当する 1 nm と仮定すると、固体の熱伝導、吸着膜の熱伝導、1 気圧における気体の熱伝導による熱コンダクタンスはそれぞれ、 10^{-5} W K^{-1} 、 10^{-5} W K^{-1} 、 10^{-4} W K^{-1} 程度となり気体を通しての熱輸送が支配的となる。これは、大気中での計測では試料表面の温度情報に関する空間分解能が気体の熱伝導効果で低下することを示している。一方、周囲気体の圧力が 10^{-2} Torr 程度になると、気体の熱伝導は 10^{-6} W K^{-1} 程度まで低下するため、プローブは吸着膜を含む直接接触部を通しての熱情報を得ることになり、空間分解能はこの接触サイズで決まることになる。固体接触部と吸着膜を通した熱輸送に関しては、著者らの探針の曲率半径が $1 \mu\text{m}$ 程度のプローブによる実験では、接触コンダクタンスが試料を大きく加熱することで半分程度に低下する結果が得られ両者の同等の寄与が観察された。また、カンチレバーの探針の曲率半径が 100 nm と小さい場合、吸着膜を通した熱輸送が支配的であると報告されている。²⁶⁾ よって、10 nm スケールの空間分解能を実現するような状況では、固体表面の吸着物質による熱輸送が支配的になる

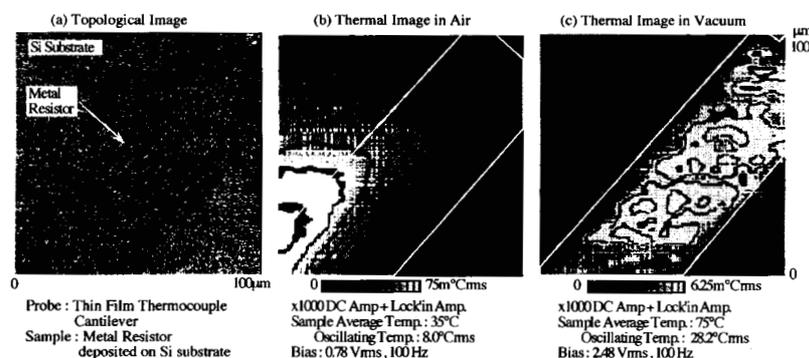


Fig.8 Si 基板上の金属抵抗, (a) トポ画像, (b) 空气中で計測された温度画像, (c) 真空中で計測された温度画像

と予想される。

熱情報が吸着膜を含めた接触部を通して伝達される状況では、熱計測の空間分解能はその接触スケール程度であり、10 nm 程度の値が予想される。試料表面の温度をどの程度の精度で、また、どの程度で計測するかは、試料・カンチレバー系の応答によって決定される。

試料に接するカンチレバーは、接触部の熱抵抗 R_t 、先端部の熱電対接点までの熱容量 C_m 、熱電対接点からベースまでのカンチレバーの熱抵抗 R_c 、および、その熱容量 C_c が直列に接続された集中定数モデルで表すことができる。細線 / 薄膜型熱電対カンチレバー、 Si_3N_4 製カンチレバーに蒸着した薄膜型熱電対、ナノ接点熱電対カンチレバーの代表的な数値を見積もり、その周波数特性を調べると Fig.7 となる。ゲインは試料温度の振幅と計測値の比を示し、試料の温度を知るには計測値をゲインで割る操作を行うことになる。低周波数における平坦な部分は静的な熱バランスが成立している範囲であり、細線 / 薄膜型、薄膜型、ナノ接点型は、それぞれ 6.2%、17%、62% の大きさの計測値となることを示している。このバランスは接触部の熱抵抗とカンチレバー本体の熱抵抗の比で決まり、接触抵抗を小さくするかカンチレバーの熱抵抗を大きくすることが温度計測精度の向上につながる。また、応答速度に関しては、細線 / 薄膜型は 1 Hz、薄膜型、ナノ接点型は 100 Hz 程度の応答速度を持つことが示された。100 Hz 程度の速度を持てば 1 秒で 1 ラインの走査を行い 100 秒程度で画像計測を行えるため実用的なものとなる。

ここでは、静的に接触していることを仮定して、熱伝達特性と形状から計測性能を論じたが、プローブを走査し画像計測を行う場合、接触熱コンダクタンスは試料の凹凸や熱物性、吸着物質の多少、接触荷重等により変化する。この現象は、SThM における計測値のキャリブレーションや試料の絶対温度の決定が困難であるという問題に結びつく。この件に関してはその対策と共に後述する。

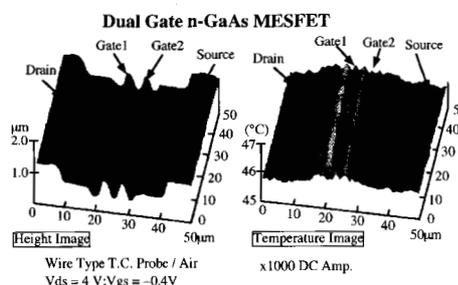


Fig.9 Mesfet の形状および温度分布計測結果

3.4 計測例

Fig.8 はシリコン基板上の金属抵抗体の計測結果²⁷⁾である。大気圧下で計測した形状 (a) と温度画像 (b)、 10^{-4} Torr 以下の真空環境下で計測した温度画像 (c) を示している。薄膜熱電対カンチレバーを使い、抵抗体に 100 Hz の交流を印加し 200 Hz の温度変動をロックイン計測したものである。この周波数は、低周波ほど試料の温度振幅が大きく、かつ計測系の応答性が高いことと、高周波ほどノイズの除去と計測時間の短縮が行えることから実験的に決められた。1 ラインのスキャンには 10 秒を要している。大気中での計測では、カンチレバーは気体を通しての熱伝導で暖められるため温度画像は大きく歪んでいるのに対し、真空中の計測では抵抗体が発熱している様子が明確に示されている。熱電対が感じる温度変動は、抵抗変化から求めた抵抗体の温度変化に対して大気中で約 1%、真空中で約 0.2% であり、辛うじて温度画像を得ているがカンチレバーの性能は実用的な域には達していない。

Fig.9 は細線型熱電対カンチレバーで計測された二つのゲートを持つ MESFET (Metal Semiconductor Field Effect Transistor) の形状と熱イメージである。²⁰⁾ 走査速度 0.2 Hz、熱電対信号は DC アンプで 1000 倍に増幅、大気中で計測された。市販のプローブに比べプローブ先端曲率が小さい

走査型熱顕微鏡による微小スケール熱計測

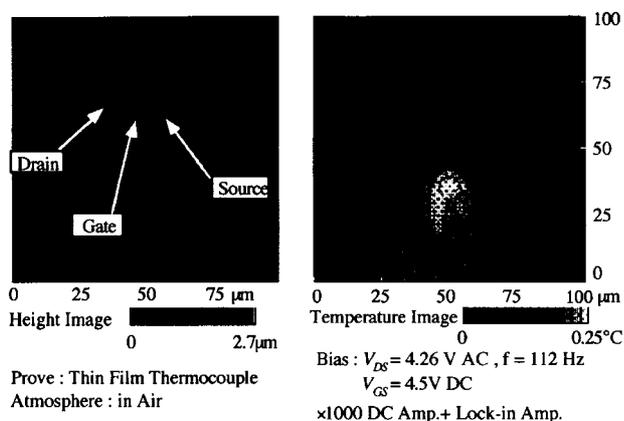


Fig.10 破損したMOSFETの高さおよび温度イメージ

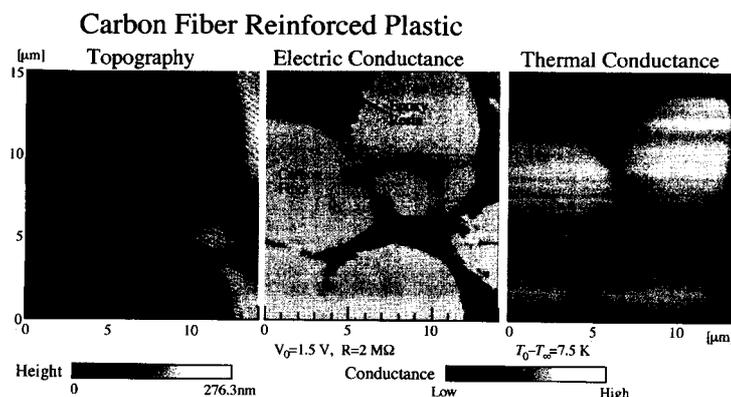


Fig.11 CFRPの形状，電気伝導，熱伝導画像

め形状像では電極の段差部が鈍って計測されている。熱画像では、ドレイン、ソース電極に挟まれた部分が高い温度になっていることが観察されるが、二つのゲート付近にみられる凹凸は、温度の高低ではなく、形状の凹凸による局所的な熱コンダクタンスの大小が現れたものである。

Fig.10はMOSFET (Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor) を薄膜型熱電対カンチレバーで計測した結果である。²⁷⁾ 大気中で、0.1 Hzの走査速度、ドレイン・ソース間に112 Hzの交流電圧を印加し、2倍の周波数にロックインし熱画像を得ている。形状画像からは使用したカンチレバーが市販のカンチレバーに劣らぬ空間分解能を有していることが分かる。熱画像では、ゲート電極の接点付近で主に発熱していることが観察される。このMOSFETが正常に作動していれば、Fig.9のようにドレイン・ソース間に高温領域が観察されるはずであるが、実はこのデバイスは実験中にバイアス電圧をかけ過ぎ電極間がショートしており、一種の抵抗として発熱をしているもの

である。この例は、形状からは判断できない故障の様子を熱的に診断可能であることを示す好例である。

Fig.11には薄膜 / 細線型熱電対プローブで計測されたCFRPの断面の像である。²¹⁾ 表面を研磨しているため形状像には僅かに炭素繊維がエポキシ樹脂部より高くなっていることが示されているだけだが、電気伝導性を調べると材質の違いが100 nm以下の分解能で検出されている。真空中で試料をプローブより高い温度に維持しながら熱電対プローブで熱伝導性を調べた結果は、熱伝導性の高い炭素繊維が十分に観察され、サブミクロンスケールでの熱物性分布計測が行われていることを示している。

Fig.12はGaAs基板上に形成された幅1.3 μm の金のラインを通電加熱したときの形状・熱画像である。²³⁾ ナノ接点熱電対カンチレバーを使い大気中で計測されている。ガスの熱伝導の影響で発熱体の左右で非対称な温度分布が得られてしまっているが、発熱体の温度情報は十分な大きさに計測されている。これは、センサーサイズが極端に小さい

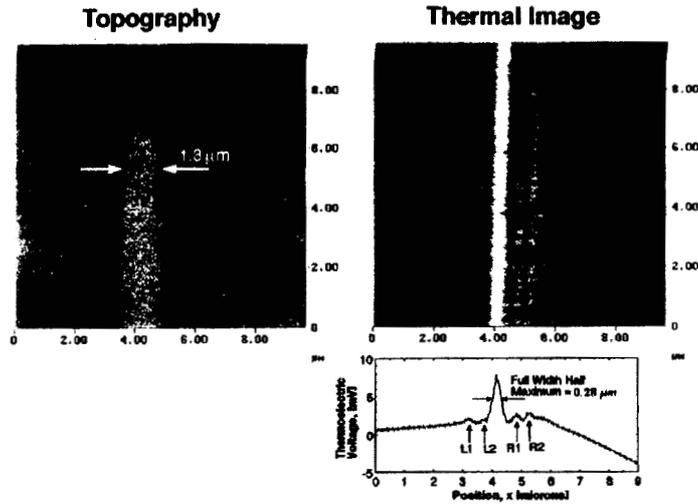


Fig.12 微細金属配線の形状と温度分布

場合、大気中でも試料表面の実温度に近い温度分布が得られる可能性を示している。また、発熱体の幅よりも高温領域の幅が狭く計測されており、この点は明確な説明がされていないが、ナノ接触熱電対カンチレバーにより10 nm程度の分解能で熱イメージが得られたと報告されている。

3.5 温度計測に関する問題点とその対応

熱電対型やRTD型のS_{Th}Mでは、プローブを試料に接触させプローブ上のセンサー温度を検出する受動的な熱計測が行われている。これは、基本的に試料からプローブへの熱輸送量の大小を計測することであり、その熱輸送量の大小は試料の温度と接触コンダクタンスに依存する。接触コンダクタンスは試料の凹凸や物性の違い、表面の付着物、吸着物質等の影響で走査中に変化するため、上述の計測例のように熱画像は温度分布とコンダクタンス変化の両方の影響を含んでおり、それらを分離し真の温度分布を求めることは事実上不可能である。何らかの手法で接触コンダクタンスを制御または実測し計測結果を較正する方法やセンサー温度が試料温度とごく近い値となるようにカンチレバーの熱コンダクタンスを非常に小さくする方法が理論的には考えられるが、いずれもその現実性は低い。

現在のS_{Th}Mは10 nm程度の接触点を通して試料の熱情報を検出することで、数10 nmの空間分解能を持つ熱画像計測を可能にしなが、被計測量が物理的に曖昧であり、試料の実際の温度を直接計測できないという状況にある。言い換えると、S_{Th}Mが空間分解能に関しては他の計測法を圧倒的に凌駕しているのに対し、温度計測の精度が極端に低いという問題である。

この状況を打開するため、著者らは、プローブ・試料間の熱輸送を常にゼロとした状態、すなわちプローブ温度を

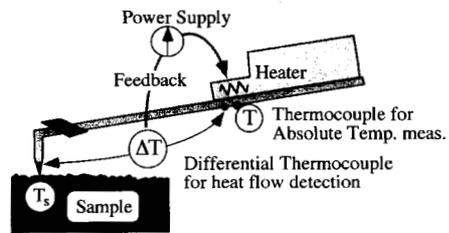


Fig.13 能動型実温度計測法の原理

接触部の温度と常に一致させるフィードバックをかけながらプローブ温度を測ることで試料の実温度を計測する能動型実温度計測法²⁸⁾を提案し、高空間分解能と高い温度計測精度を備えたS_{Th}Mの開発を目指している。この手法は、いわゆる零位法 (null method) の発想を使い、カンチレバーと試料が同温度の状態では両者の間に熱移動は無く、接触コンダクタンスが有限な値であれば、原理的にはどのような接触状態でも試料の実温度が計測可能となるものである。

Fig.13にこの能動型実温度計測法の原理図を示す。プローブを流れる熱流束をカンチレバー先端と根元の温度差を測る差動熱電対で検出し、その熱流束がゼロとなるようにカンチレバー温度をヒーターでフィードバック制御し、試料と同温度のカンチレバー温度をもう一つの熱電対で計測するものである。

これまで、長さ1 mm程度の薄膜・細線型熱電対カンチレバーの根元にヒーターと別の熱電対を取り付けたプローブを試作し、カンチレバーを流れる熱流束を差動熱電対で測りその平方根に比例した電圧をヒーターに印加しながら、ヒーター部の温度を検出し、Fig.14に示す結果を得ている。熱伝導率の大きな金の試料 (約300 W m⁻¹K⁻¹) ではその実温

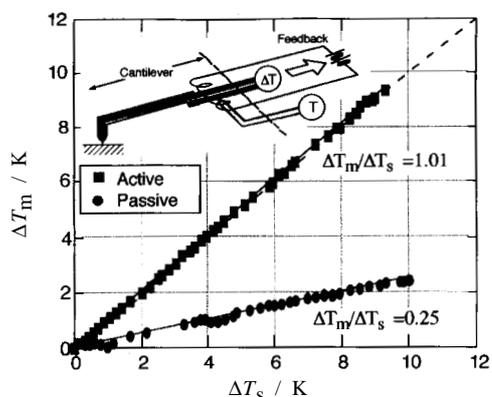


Fig.14 受動的手法と能動的手法による計測値の比較

度が約0.1 Kの精度で計測されており、フィードバックを利用しない受動的計測では実温度の約25%の値が計測されているため、能動型計測法による実温度計測の原理が確認されたと言える。また、この試作システムでは、熱伝導率の小さなガラス試料(約 $1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$)では実温度の35%程度の値しか得られない、計測に数秒の時間がかかるという問題が出てきているが、これらは、能動型計測法が期待通りに作動するには、試料・カンチレバー・カンチレバーベースの各部の熱コンダクタンス、熱容量、そして、フィードバック定数が適切に設定される必要があることを示している。さらに、カンチレバーの温度変化が自身の大きな熱変形を起こすという問題もあり、カンチレバーの総合的な設計が必要である。

計測システムを試料、熱電対接点を持つカンチレバー先端部、ヒーターを含むカンチレバー本体部、カンチレバーベースの四つの部分に分け、集中定数モデルでその周波数応答を解析することで、計測結果と一致する特性が得られている。現在、半導体微細加工技術を用いて製作する実温度計測用カンチレバーを想定し、熱伝導率が $1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ と小さな試料に対しても10 Hz以上の応答速度を持つカンチレバーをデザインし、その製作に取り組んでいる。試作中の一例として、Si基板上の0.5 μm厚のSiO₂上にクロムとチタンで製作されたパターンの顕微鏡写真をFig.15に示す。差動熱電対、熱電対、ヒーターが約600 μmの大きさの中に作り込まれており、今後、このパターンをカンチレバー上に作り込み実温度計測法の実証研究を行う予定である。このプローブがどのような性能を発揮するかは今後の成果を期待して頂きたい。

試料の実温度を計測する能動型計測法は熱的フィードバックを必要とし、システムとして複雑になる反面、試料の熱物性値や形状、計測中の接触状態の変化による熱コンダクタンスの変化をフィードバック系が吸収するため、カンチレバーやセンサーの微小化が実現すれば、高い空間分解能に加え、

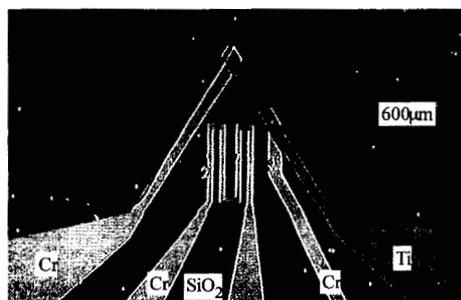


Fig.15 能動型実温度計測用カンチレバーのパターン

高い精度での温度計測が実現する。また、このフィードバック系はカンチレバーの温度を測る熱電対のキャリブレーションさえできていれば、カンチレバーの個体差を吸収する効果があり、計測に対する利便性が向上すると期待される。

4. おわりに

サブミクロン領域での温度計測を目指し、S_{Th}Mの開発研究が始まってから10年が経つが、これまでSPMを様々な形に拡張した計測法が試みられており、本稿では六つのタイプに関しその概要と特徴を示した。著者の考えでは、空間分解能と温度の計測精度が見込める点で熱電対カンチレバーを利用する手法が有望であると位置付けているため、熱電対型S_{Th}Mに関して詳細な説明を行った。微小な接触部を通して熱情報を検出し高い空間分解能が実現されること、温度検出感度を向上させる様々な工夫が行われていることが理解して頂けたと思う。

また、大学等でのS_{Th}M研究では、微細な熱計測用カンチレバーの製作が鍵となっており、そのノウハウを蓄積し完成させるまでに多大な時間と労力を要している。さらに、カンチレバーが微細で高感度であるほど、デリケートで壊れやすく、丹精込めて作ったカンチレバーが一度の実験で機能しなくなったり、データ取得以前に壊れてしまうという例が多々ある。このことは、S_{Th}Mの実用化に際し便利で有用な装置とするには、マイクロファブリケーションによる高感度なカンチレバーの開発とそれを一括して大量に製作する技術の確立が重要であることを示唆している。今後、研究・開発もこのような方向で取り組むことが必要であろう。

現在、S_{Th}Mの開発は、実験室レベルでの計測原理の確認や性能評価が一応の成果を挙げ、一部で市販機が登場している段階である。従来の熱計測の限界を破る微細な温度、物性値の計測が可能であることが実証されたことで、今後、微細化する電子デバイスの直接温度計測による健全性評価や物質の微細構造に依存する熱輸送特性の解明、固体表面で起こる局所的な触媒反応の直接観察、複合材料の個々の

構成物の熱物性の評価など, SThMの活躍の場はかなりの広がり持つと予想され, 今後のSThMの発展とそれによる科学技術の進展を期待するものである。

文 献

- 1) S. Kondo, K. Ogasawara, and K. Hinode, *J. Appl. Phys.* **79**[2], pp.736-741 (1996).
- 2) Y. S. Ju and K. E. Goodson, ASME-DSC-Vol.59, Microelectro-mechanical Systems, pp.31-36 (1996).
- 3) R. Ostermeir, K. Brunner, G. Abstreiter, and W. Weber, *IEEE Trans. Electron Devices.* **39**[2], pp.858-863 (1992).
- 4) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 57 (1982).
- 5) G. Binnig, C. F. Quate, and Ch. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 930 (1986).
- 6) 森田清三, 走査型プローブ顕微鏡のすべて, 工業調査 (1992).
- 7) 森田清三, 原子間力顕微鏡のすべて, 工業調査会 (1995).
- 8) U. Dammer, M. Hegner, D. Anselmetti, P. Wagner, M. Dreier, W. Huber, and H. J. Güntherodt, *Biophys J* **70**, pp.2437-2441 (1996).
- 9) C. C. Williams and H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **49**[23], pp.1587-1589 (1986).
- 10) J. M. R. Weaver, L. M. Walpita, and H. K. Wickramasinghe, *Nature* **342**, pp.783-785 (1989).
- 11) M. Nonnenmacher and H. K. Wickramasinghe, *Appl. Phys. Lett.* **61**[2], pp.168-170 (1992).
- 12) A. Majumdar, J. P. Carrejo, and J. Lai, "Thermal imaging using the atomic force microscope", *Appl. Phys. Lett.* **62**, pp.2501-2503 (1993).
- 13) R. J. Pylkki, P. J. Moyer, and P. W. West, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, pp.3785-3790 (1994).
- 14) O. Nakabeppu, M. Chandrachood, Y. Wu, J. Lai, and A. Majumdar, *Appl. Phys. Lett.* **66**, pp.694-696 (1995).
- 15) K. E. Goodson and M. Asheghi, *Microscale Thermal Transport* **1**[3], pp.225-236 (1997).
- 16) J. Varesi and A. Majumdar, *Appl. Phys. Lett.* **72**, pp.37-39 (1998).
- 17) Digital Instrurument 社 (<http://www.di.com>), Thermo Micoscope 社 (<http://www.thermomicro.com>), TA Instruments 社 (<http://www.tainst.com/>).
- 18) D. W. Pohl, V. Ch. Fischer, and U. T. Durig, *J. Microscopy* **152**, p.853 (1988).
- 19) 大津元一, 応用物理 **65**, 2 (1996).
- 20) A. Majumdar, J. Lai, M. Chandrachood, O. Nakabeppu, Y. Wu, and Z. Shi, *Rev. Sci. Instrum.* **66**, pp.3584-3592 (1995).
- 21) 中別府 修, 井下田真信, 梶井 誠, 土方邦夫, 機論B **64**, pp.549-555 (1998).
- 22) O. Nakabeppu, M. Igeta, and K. Hijikata, *Microscale Thermophysical Engineering* **1**, pp.201-213 (1997).
- 23) K. Luo, Z. Shi, J. Lai, and A. Majumdar, *Appl. Phys. Lett.* **68**, pp.325-327 (1996).
- 24) Y. Suzuki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, pp.L352-L354 (1996).
- 25) G. Mills, H. Zhou, A. Midha, L. Donaldson, and J. M. R. Weaver, *Appl. Phys. Lett.* **72**, pp.2900-2902 (1998).
- 26) K. Luo, Z. Shi, J. Varesi, and A. Majumdar, *J. Vac. Sci. Technol. B* **15**, pp.349-360 (1997).
- 27) 中別府 修, 土方邦夫, M. Chandrachood, J. Lai, and A. Majumdar, 機論B **62**, pp.284-290 (1996).
- 28) O. Nakabeppu, M. Igeta, and T. Inoue, *Thermal Science & Engineering* **7**, pp.87-94 (1999).

要 旨

原子間力顕微鏡や走査型トンネル顕微鏡に様々な手段で温度計測機能を付加することで, 走査型熱顕微鏡が開発されてきた。SThMは100 nm以下の空間分解能で試料表面の温度や物性値の分布を計測することが可能である。熱計測における空間分解能の大幅な向上は, 例えば微小電子デバイスや集積回路, 複合材料, 局所的な触媒反応など, 従来不可能であったサブミクロン構造物の熱的な直接観察を可能とするだろう。本稿では, 様々な手法のSThMの特徴と現状を概説し, 特に将来性の有望な熱電対型SThMについて詳しく説明する。さらに, 高い空間分解能を持ちかつ正確に試料の実温度を計測する能動型計測法について紹介する。

中別府 修 Osamu Nakabeppu
東京工業大学工学部機械宇宙学科,
Tokyo Institute of Technology Faculty
of Engineering, TEL. 03-5734-3172,
FAX. 03-5734-3982, e-mail: onakabep@
mes.titech.ac.jp
研究テーマ: SThM, マイクロポンプ, マ
イクロチャンネル, 熱伝達, 結晶成長,
可逆的熱収縮性粒子
趣味: 猫と遊ぶこと, D.I.Y., スポーツ
観戦