



基于 FIB-SEM 双束系统制备 TEM 原位加热样品

林晓冬, 梁 雪, 李毅丰, 陈文霞*, 鲁 波, 李 强

(上海大学 分析测试中心, 上海 200444)

摘要: 聚焦离子束-扫描电子显微镜(FIB-SEM)双束系统因具有定位精准、加工精度高等优点, 被广泛用于微纳尺度样品的高质量制备, 如定点截面加工、纳米图形加工、透射电子显微镜(TEM)和三维原子探针样品等。然而, 随着 TEM 原位表征技术的发展, 对样品的制备提出了更高的要求。其中, TEM 原位加热样品由于受加热芯片几何形状的限制, 在样品的提取、转移和减薄等工序上具有较高的技术难度。利用 FIB-SEM 双束系统, 在传统 TEM 样品制备工艺基础上, 通过合理改进制备流程和参数, 调整样品提取和减薄顺序, 并配合低电压清扫工艺, 成功制备了可用于原位加热和表征的 TEM 样品。

关键词: 聚焦离子束-扫描电子显微镜双束系统; 原位加热; 低电压清扫; 样品制备

中图分类号: TG115.21

文献标志码: A

DOI: 10.12179/1672-4550.20230201

Fabrication of *In-situ* Heating TEM Specimen Based on the FIB-SEM Dual Beam System

LIN Xiaodong, LIANG Xue, LI Yifeng, CHEN Wenxia*, LU Bo, LI Qiang

(Instrumental Analysis & Research Center, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

Abstract: Due to the advantages of high accuracy of location and fabrication, the focused ion beam-scanning electron microscopy (FIB-SEM) dual beam system is extensively employed in the preparation of micro/nano-scale specimens used for cross-section preparation, micro/nano-prototyping, transmission electron microscopy (TEM) and atom probe tomography (APT) analyses. However, the development of *in-situ* characterization techniques in TEM requires higher quality of specimens, among which it is a significant challenge for preparing *in-situ* heating TEM specimens due to the heating chip geometry, especially during the processes of lift-out, transfer and thinning. Therefore, the FIB-SEM dual beam system is used in this work, and TEM specimens applicable to *in-situ* heating and characterization are successfully prepared through modifying procedures and parameters based on the traditional fabrication processes.

Key words: FIB-SEM dual beam system; *in-situ* heating; low voltage milling; specimen fabrication

相较于扫描电子显微镜(SEM), 聚焦离子束(FIB)是一种新兴的测试和加工技术。虽然 FIB 与 SEM 的工作原理和基本结构相似, 但二者的入射粒子束不同。SEM 的入射粒子束为电子, 能对样品的表面形貌进行成像; 而 FIB 的入射粒子束是离子(目前应用最普遍的是 Ga^+), 离子束对样品表面进行轰击、溅射, 实现对样品的精准切割和加

工^[1-3]。在科研和生产中, 一般将 SEM 和 FIB 相结合, 构成聚焦离子束-扫描电子显微镜(FIB-SEM)双束系统。因其同时具有离子束和电子束镜筒, 因此既可使用离子束对样品进行精准加工, 又可使用电子束对加工过程进行实时高分辨成像与观察^[4-5]。此外, FIB-SEM 双束系统还配备了气体注入系统, 可利用辅助气体进行诱导沉积或增

收稿日期: 2023-04-12; 修回日期: 2024-03-22

基金项目: 国家自然科学基金(52201079); 中国博士后科学基金(2021M692018)。

作者简介: 林晓冬(1991-), 男, 博士后, 讲师, 主要从事核电结构材料的微观组织表征方面的研究。

* 通信作者: 陈文霞(1978-), 女, 硕士, 实验师, 主要从事聚焦离子束加工技术方面的研究。E-mail: wenxia_chen@

shu.edu.cn

强刻蚀, 常用辅助气体有 Pt 沉积、C 沉积、W 沉积和 SiO_2 沉积, 以及起到增强刻蚀作用的 XeF_2 、 I_2 等^[6-7]。若在 FIB-SEM 双束系统中配置纳米机械手, 可对加工出的微区样品进行焊接和提取等操作^[8-10]; 若在双束系统中配备能谱仪(energy dispersive spectrometer, EDS)和背散射电子衍射(electron back scattered diffraction, EBSD)等附件, 还能分析材料的化学成分和晶体取向^[11]。在材料科学、半导体和生命科学等领域, FIB-SEM 双束系统被广泛用于微纳尺度样品的加工, 如截面样品的切割和成像、微纳图形加工、透射电子显微镜(TEM)薄片样品和三维原子探针(APT)针尖样品的制备等^[12-14], 为材料的显微组织表征提供了坚实的技术保障。

TEM 是材料、冶金、物理、化学、地质、半导体和生物等领域不可或缺表征手段, 而 TEM 样品的制备是开展表征和分析工作的重要前提。相比传统的 TEM 薄片样品制备方法, 如离子减薄和电解双喷等, FIB-SEM 双束系统具有独特的优势, 它通过 SEM 成像或结合 EDS 和 EBSD 分析, 能制备出特定位置或特定晶体取向的 TEM 样品。此外, 利用双束系统制备 TEM 样品, 对原始样品破坏小、制备周期短, 如仅需 2 h 即可制备出一个常规的 TEM 薄片样品。

近年来, TEM 除了用于传统的高分辨成像(high resolution transmission electron microscopy, HRTEM)、选区电子衍射(selected area electron diffraction, SAED)、EDS 和电子能量损失谱(electron energy loss spectroscopy, EELS)分析外, 还发展出了许多新型的功能性测试技术, 如在 TEM 下对样品进行加热、通电、通气、辐照和拉伸等原位测试^[15-19]。然而, 与常规双束系统的“lift-out”方法制备 TEM 截面样品^[20-21]相比, TEM 原位测试样品的制备需满足特定的需求, 存

在较高的技术难度, 特别是在制备可用于 TEM 原位加热的样品时, 样品需加工成尺寸仅几微米、厚约 100 nm 的薄片, 然后固定于专用的加热芯片上, 这给操作人员带来了挑战。若沿用常规的 TEM 截面样品制备方法, 由于设备样品台倾斜角度和机械手安装方位的限制, 很难将提取出来的 TEM 样品水平放置于芯片上, 难以进行后续减薄, 且高电压的离子束(通常为 30 kV)轰击易对样品和加热芯片造成离子辐照损伤^[22]。对于块体材料, FIB-SEM 双束系统目前仍是定点制备 TEM 原位加热样品的唯一手段^[23], 但其技术难度一定程度上限制了 TEM 原位加热技术的发展与应用, 因此亟须改进制备流程、优化加工参数, 发展高效率、高质量的制备工艺。

本文利用 FIB-SEM 双束系统, 在常规 TEM 截面样品制备工艺基础上, 通过合理改进制备流程和参数, 成功制备了可用于原位加热、表征和分析的 TEM 样品。

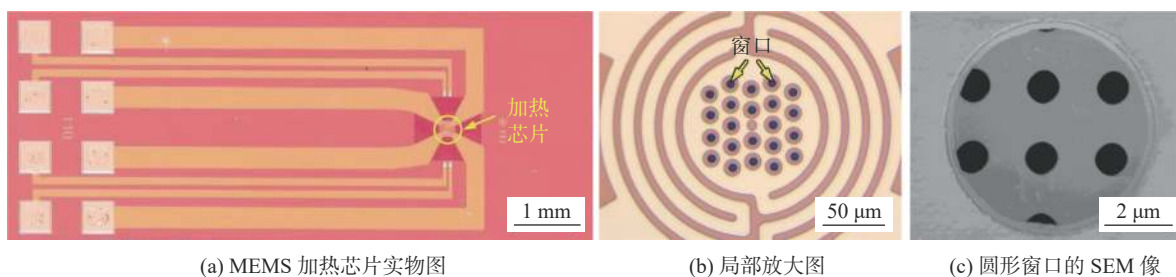
1 实验方法

1.1 实验材料

实验材料所用的样品为单晶硅标准样品。

1.2 实验仪器

本文实验所用仪器为美国赛默飞公司的 Helios 系列 FIB-SEM 双束系统, 配备 Pt 沉积和 C 沉积系统及 Easylift 纳米机械手。加热芯片使用赛默飞公司的微机电系统(micro-electron-mechanical system, MEMS)芯片, 如图 1(a)所示。加热芯片处存在 22 个直径为 5 μm 的圆形窗口, 每个窗口中均存在一层 15 nm 厚的 Si_3N_4 非晶薄膜, 如图 1(b)和图 1(c)所示。与传统的坩埚式加热和金属丝加热方式相比, MEMS 原位加热技术具有漂移小、热稳定性好等优点^[24], 因此逐渐受到广泛关注和应用。



(a) MEMS 加热芯片实物图

(b) 局部放大图

(c) 圆形窗口的 SEM 像

图 1 实验系统

1.3 制备过程

利用 FIB-SEM 双束系统制备截面 TEM 样品一般采用传统的“U-cut”或“lift-out”方法, 主要有以下 6 个步骤。

1) 沉积保护层

在样品表面特定区域依次使用电子束和离子束, 通过诱导沉积的作用沉积尺寸为 $10\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ 的 C 保护层, 以保护该区域免受离子束的轰击与损伤, 如图 2(a)和图 2(b)所示。

2) 粗挖坑、精修

使用 30 kV、30 nA 离子束分别在 C 层两侧挖出尺寸较大的坑, 然后在 30 kV 下, 依次用 9、4.7、2.5 nA 的束流进行精修, 在中间位置留出厚度约 $1\sim 2\ \mu\text{m}$ 的待提取片状试样, 如图 2(c)所示。

3) U-cut

用离子束将片状试样底部和一侧切断, 另一侧仅保留一部分与周围基体相连, 如图 2(d)所示。

4) 提取 lift-out

缓慢操作机械手使其接近片状试样切断的一

侧, 然后利用 C 沉积方式焊接片状试样和机械手尖端, 再切断片状试样与周围基体相连的部分, 然后再操控机械手提取样品, 如图 2(e)所示。

5) 转移

操作机械手将提取出的样品转移到支架顶端 (一般直径为 3 mm 的半圆形铜或者钼支架), 两端采用 C 沉积方式将样品和支架焊接固定, 然后用离子束切断片状试样和机械手尖端连接处, 收回机械手, 如图 2(f)所示。

6) 减薄

先在 30 kV 电压下依次使用 1.2、0.44、0.26 nA 和 90 pA 的束流将提取出来的 TEM 试片减薄到约 $120\sim 150\ \text{nm}$ 的厚度; 再利用低电压小束流的离子束对试片的两侧进行清扫, 参数依次是 5 kV、41 pA 和 2 kV、23 pA, 清扫时样品有 $3^\circ\sim 5^\circ$ 的倾斜角度, 确保在 FIB 的低电压下能观测到试片的侧面, 直到 TEM 样品厚度小于 $100\ \text{nm}$, 以满足 TEM 测试的需求, 如图 2(g)所示; 最终得到的 TEM 样品如图 2(h)所示。

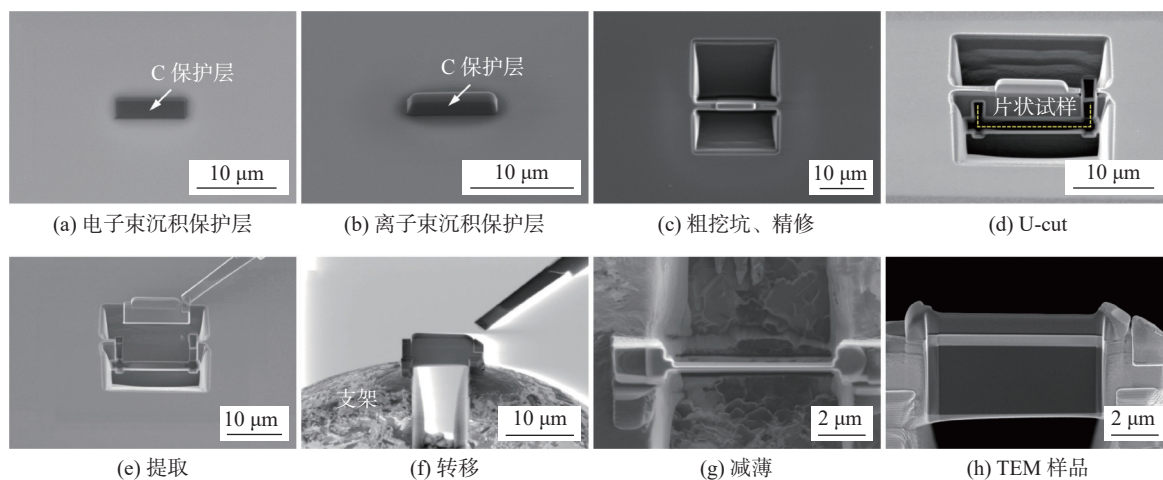


图 2 采用传统“U-cut”方法制备 TEM 样品过程

对于原位加热的 TEM 样品, 其制备过程中的提取步骤与上述“U-cut”方法基本相同, 但由于后续需要将样品水平放置并焊接固定到加热芯片上, 受 FIB 加工的样品角度限制, 难以在 30 kV 电压下继续减薄, 因此与常规 TEM 样品不同, 原位加热样品需在提取前将试样减薄至电子束穿透厚度约 $100\ \text{nm}$ 。图 3 为使用 FIB-SEM 双束系统制备原位加热 TEM 样品时的提取过程。在电压 30 kV 下依次使用束流为 1.2、0.44、0.26 nA 和 90 pA 的离子束将样品减薄至 $100\ \text{nm}$ 左右, 如图 3(a)~

图 3(d)所示, 然后将样品台旋转 90° , 使样品由水平方向转至竖直方向, 如图 3(e)所示, 再利用机械手提取薄片样品, 如图 3(f)所示。

研究表明, 高电压 (30 kV) 的聚焦离子束轰击样品时会对样品产生辐照损伤, 导致制备出来的 TEM 样品的侧面形成一定厚度的非晶层, 需利用 FIB 的低电压清扫方法加以去除^[25-27]。然而, 若在样品提取前进行低电压清扫, 从周围基体轰击出的原子 (或原子团簇) 易吸附、再沉积到样品侧面, 致使样品产生污染。因此, 低

电压清扫需在样品提取之后在机械手尖端进行，清扫步骤如图 4 所示。先将机械手旋转-90°，SEM 像如图 4(a)所示；离子束图像下可观察到薄片样品的背面，依次使用 5 kV、41 pA 和 2 kV、23 pA 离子束对样品背面的矩形区域进行低电

压清扫，如图 4(b)和图 4(c)所示，清扫后薄片样品的 SEM 像如图 4(d)所示。需要说明的是，受机械手安装的方位和角度限制，提取的薄片样品只能进行一侧(即图 3(e)所示样品背面)的清扫。

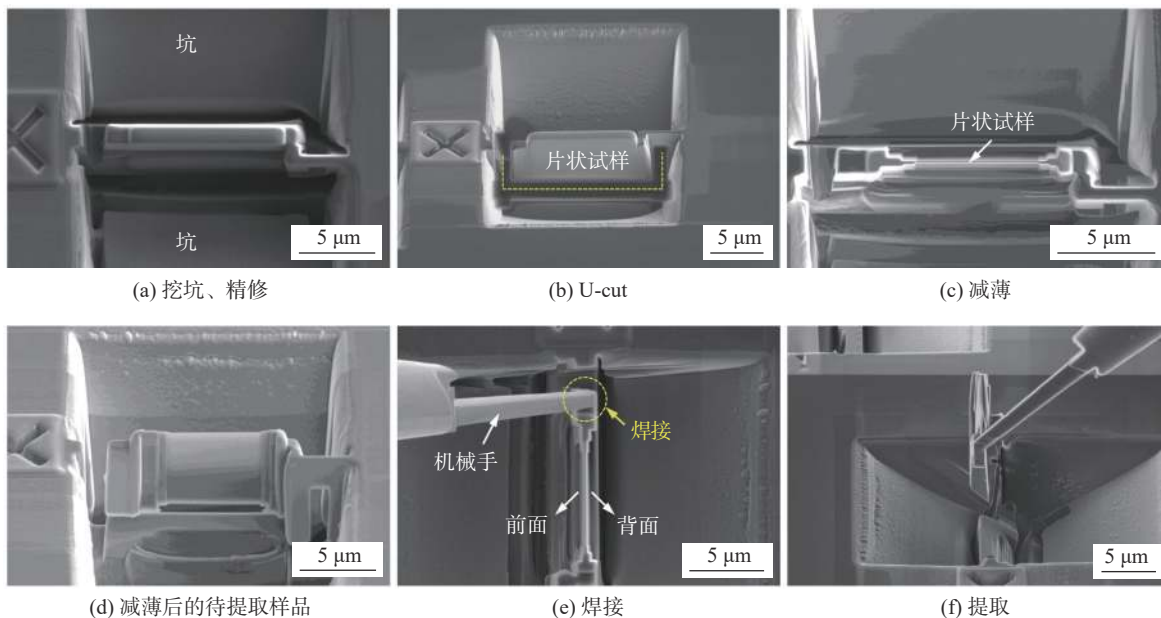


图 3 制备原位加热 TEM 样品过程

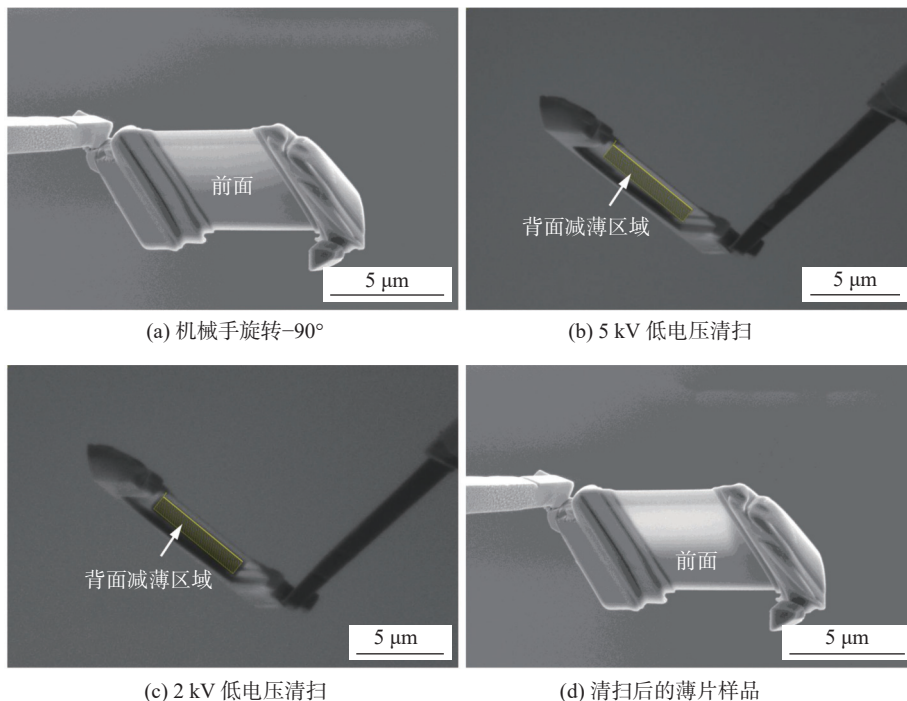


图 4 低电压清扫已提取的 TEM 薄片样品

一侧的低电压清扫完成后，需将薄片样品固定于加热芯片上。由于芯片表面镀有不导电的 Si₃N₄ 薄膜，在 SEM 下寻找加热芯片并进行观察

时，高电压下易产生荷电效应，影响成像和操作，因此需在低电压(1 kV)下进行观察，以减少电荷积累。此外，在焊接薄片样品前，需先使用

30 kV 离子束将加热芯片上圆形窗口内的 Si_3N_4 薄膜击穿, 否则会影响后期的 TEM 观察, 如图 5(a)所示。此时, 机械手尖端的薄片样品的二次电子像和离子像分别如图 5(b)和图 5(c)所示。先将机械手旋转 180° , 然后将样品放在加热芯片的窗口上, 并通过 C 沉积的方式将薄片样品焊接在芯片上, 如图 5(d)和图 5(e)所示。切断机械手尖端与样品连接部分, 并撤回机械手, 如

图 5(f)所示。需要说明的是, 由于 30 kV 的离子束会损伤薄片样品, 因此在整个操作过程中应尽量采用低电压(如 5 kV 以下)、小束流(如 41 pA 以下)进行。最后, 需对已固定的薄片样品的上侧(即图 3(e)所示样品前面)进行低电压清扫, 清扫条件和之前一样, 分别为 5 kV、41 pA 和 2 kV、23 pA, 最终获得适用于原位加热的 TEM 薄片样品, 如图 6 所示。

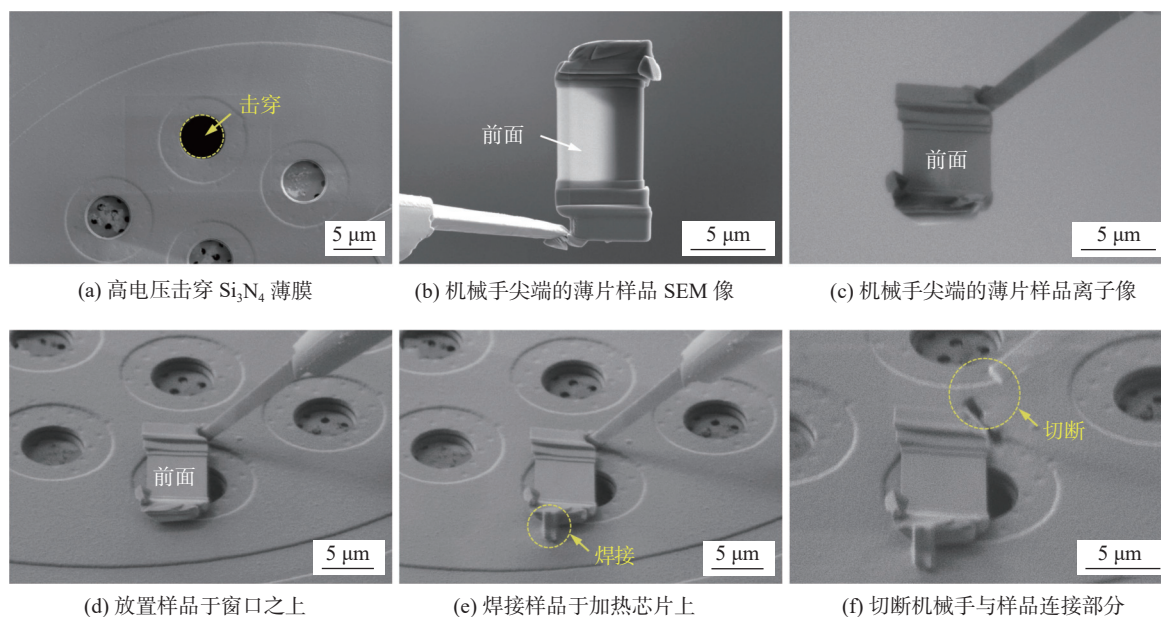


图 5 焊接样品过程

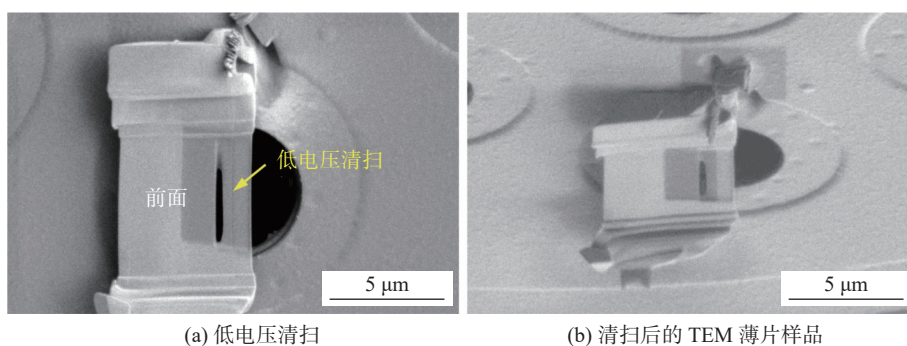


图 6 低电压清扫样品

2 实验结果

设置目标温度为 350°C , 对加热芯片上薄片样品的温度进行了实时测定, 如图 7 所示。

可以看出, 在升温时样品温度迅速达到目标温度并保持在 350.03°C , 说明采用 1.3 节所述方法制备出的薄片样品适用于 TEM 原位加热测试。

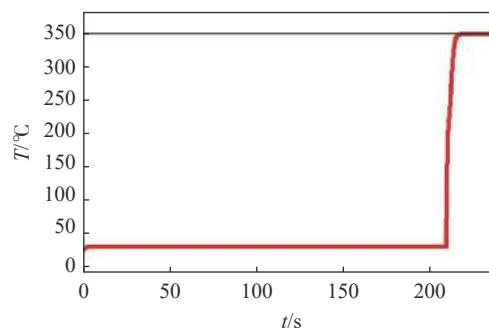


图 7 加热过程中样品温度随时间的变化曲线

3 结束语

利用 FIB-SEM 双束系统制备原位加热的 TEM 样品时, 需在提取前将样品减薄至 100 nm 左右, 提取后在机械手尖端对样品一侧进行低电压清扫, 这与常规 TEM 截面样品的制备方法存在较大差异。此外, 为减小离子束对薄片样品和加热芯片的辐照损伤, 最后需对固定于加热芯片上的样品进行低电压清扫。

本文提出的制备方法解决了利用传统双束系统制备方法难以对提取的样品进行均匀减薄和低电压清扫的问题, 降低了制备难度, 并且减小了离子束对样品和加热芯片的辐照损伤程度, 可用于原位加热 TEM 样品的高质量制备。

在加工效率方面, 采用本文所提方法制备 TEM 原位加热样品, 与常规 TEM 样品的加工周期(约 2 h)相近, 加工效率较高。在技术普适性方面, 由于目前各家仪器厂家的加热芯片结构相似, 仅样品观察窗口形状略有不同, 因此该技术具有一定的普适性。随着 TEM 原位加热技术的普及, 本文提出的制备方法有望得到广泛应用。

参考文献

- [1] 马向国, 刘同娟, 顾文琪. 聚焦离子束组合装置及应用[J]. *微纳电子技术*, 2007(6): 328-330.
- [2] 韩伟, 肖思群. 聚焦离子束(FIB)及其应用[J]. *中国材料进展*, 2013, 32(12): 716-727.
- [3] REYNTJENS S, PUERS R. A review of focused ion beam applications in microsystem technology[J]. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 2001, 11(4): 287-300.
- [4] 于华杰, 崔益民, 王荣明. 聚焦离子束系统原理、应用及进展[J]. *电子显微学报*, 2009, 27(3): 243-249.
- [5] 王榕, 杨文言. 聚焦离子束扫描电镜双束系统在材料研究中的应用[J]. *分析仪器*, 2014(1): 114-118.
- [6] 瞿敏妮, 李辉, 乌李瑛, 等. 聚焦离子束刻蚀铌酸锂的研究[J]. *微纳电子技术*, 2020, 57(3): 230-236.
- [7] 谢进, 江素华, 王家楫, 等. 聚焦离子束刻蚀性能的研究[J]. *半导体学报*, 2001, 22(2): 151-155.
- [8] 付琴琴, 单智伟. FIB-SEM 双束技术简介及其部分应用介绍[J]. *电子显微学报*, 2016, 35(1): 81-89.
- [9] LI P, CHEN S Y, DAI H F, et al. Recent advances in focused ion beam nanofabrication for nanostructures and devices: fundamentals and applications[J]. *Nanoscale*, 2021, 13(3): 1529-1565.
- [10] 周伟敏, 吴国英. 高性能聚焦离子束(FIB)系统及其在材料科学领域的应用[J]. *实验室研究与探索*, 2004, 23(9): 19-20.
- [11] SZILVIA K, JOHANNES A, PETER D I, et al. 3D HR-EBSD characterization of the plastic zone around crack tips in tungsten single crystals at the micron scale[J]. *Acta Materialia*, 2020, 200: 211-222.
- [12] KURODA K, TAKAHASHI M, KATO T, et al. Application of focused ion beam milling to cross-sectional TEM specimen preparation of industrial materials including heterointerfaces[J]. *Thin Solid Films*, 1998, 319: 92-96.
- [13] HALPIN J E, WEBSTER R W H, GARDNER H, et al. An in-situ approach for preparing atom probe tomography specimens by xenon plasma-focused ion beam[J]. *Ultramicroscopy*, 2019, 202: 121-127.
- [14] 梁雪, 韩洪秀, 黄娇, 等. 聚焦离子束快速制备铝合金三维原子探针样品[J]. *实验室研究与探索*, 2018, 37(8): 34-36.
- [15] 翁素婷, 张庆华, 谷林. 原位电子显微学方法在材料研究中的应用[J]. *电子显微学报*, 2019, 38(5): 556-568.
- [16] MORROW B M, CERRETA E K, MCCABE R J, et al. Transmission electron microscope in situ straining technique to directly observe defects and interfaces during deformation in magnesium[J]. *Journal of Metals*, 2015, 67: 1721-1728.
- [17] KUMAR C N S, KONRAD M, CHAKRAVADHANULA V S K, et al. Nanocrystalline graphene at high temperatures: Insight into nanoscale processes[J]. *Nanoscale Advances*, 2019, 1(7): 2485-2494.
- [18] STRAUBINGER R, WIDEMANN M, BELZ J, et al. Thermally introduced bismuth clustering in Ga(P, Bi) layers under group V stabilized conditions investigated by atomic resolution *in situ* (S)TEM[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1): 9048.
- [19] 徐开兵, 崔哲, 陈晓, 等. 原位透射电镜研究 MOF 裂解过程中金属颗粒的析出与迁移过程[J]. *实验室研究与探索*, 2021, 40(7): 23-26.
- [20] 梁雪, 李强, 黄昌军, 等. FIB 在铝合金氧化膜截面透射样品制备上的应用[J]. *实验室研究与探索*, 2012, 31(10): 287-289.

(下转第 27 页)