

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04511

研究課題名(和文) 測長原子間力顕微鏡を介した格子面間隔の透過電子顕微鏡によるSIトレーサブルな測長

研究課題名(英文) SI traceable length measurement of lattice distances by a transmission electron microscope through the intermediary of the metrological atomis force microscope

研究代表者

小林 慶太 (Kobayashi, Keita)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員

研究者番号：40556908

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：1. 撮像条件を変化させて取得したTEM像のSi格子面間隔の比較から、TEM測長における不確かさの主要な要因が、倍率の経時変動、レンズの磁気履歴ならびに歪曲であることを明らかにした。
2. TEM観察に適するよう薄膜加工したSiの格子面間隔は加工条件あるいは試料の観察部位により変動することを明らかとし、Siの格子面間隔距離をTEM測長の物差しとする際は注意を要することを示唆した。
3. 測長AFMとTEMによる比較測長を可能とするSi単結晶からなる標準物質を試作した。今後これを用いて測長AFMにより得たSIトレーサブルな測長値をTEM像中に導入し、TEMによるSIトレーサブルな測長を実現する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

サブナノメートルオーダの測長は今後の半導体プロセスルールの微細化にともない産業基盤として重要性を増すと考えられる。本研究はこのような極微スケールで利用されるTEMによる測長の結果が国際的な整合性の観点から未だ不完全であることを実験的に指摘し、国際単位系(SI)の長さの定義にトレーサブルな測長を実現するため、TEMと測長AFMとの比較測長を試みた。研究期間内に比較測長までは至れなかったがこれを行うための基盤の構築を達成した。今後研究を進展させることでサブナノメートルの測長に対する国際的整合性の確保の実現が期待できる。

研究成果の概要(英文)：1. By comparison between Si lattice spacing in TEM images obtained under different imaging conditions reveals that the major component of the measurement uncertainty in metrology using TEM are interday variation of the magnification, magnetic hysteresis and distortion of the lens.

2. The lattice spacing of thin-film processed Si for TEM observation is found to vary depending on the processing conditions or the observation area of the specimen, suggesting that care should be taken when using the lattice spacing distance of Si as a scale for TEM measurement.

3. The reference material consisting of Si single crystal that can be used for comparative measurement between metrological AFM (m-AFM) and TEM was developed. We will introduce SI-traceable measurement values obtained by m-AFM into the TEM image to realize SI-traceable measurement by TEM.

研究分野：透過電子顕微鏡

キーワード：透過電子顕微鏡 原子間力顕微鏡 ナノメトロロジー 倍率校正 シリコン 試料調製

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

工業製品の国際的な流通には、製品の公正な性能を明示するためこれを構成する部材のサイズを国際的な整合性を持った方法で測長する必要がある。測長結果の国際整合性は、国際単位系 (Système International d'unités: SI) の長さの定義から複数の標準物質を介して行われる物差しの校正において、標準物質ごとにあらわれる不確かさを評価・記録し、最終的な測長結果が持つ不確かさを SI の定義に対して明示することで保証される。このような、物差しの不確かさを校正履歴を経て SI の定義まで追跡し得る関連付けを SI トレーサビリティと称する(図 1)。

半導体生産プロセスの品質管理には、設計寸法に対するパタンの線幅、間隔、パターン位置のシフト量やその面内差、疎密差等の制御 (Critical Dimension: CD 制御) 法が活用されており、測長結果に国際整合性を確保した CD 測長技術が必須となる。近年の半導体プロセスルールの微細化は回路線幅測長にサブナノメートルオーダの空間分解能を要求する [1]。透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) はこの要求を超える優れた空間分解能を持つため現在広く半導体の CD 計測に用いられており、さらにこれからのプロセスルールの微細化にも適応できる強力な顕微鏡である。そこで TEM を用いた半導体 CD 計測の要請は今後ますます大きくなっていくと考えられる。

TEM に限らず顕微鏡を測長に用いる際にその測長値に信頼性を与えるのは倍率校正である。例えば走査電子顕微鏡の倍率校正用一次元グレーティングの測長に用いられる測長原子間力顕微鏡 (Metrological atomic force microscope: M-AFM) [2, 3] は、試料走査の駆動距離を干渉計を介してレーザー光の波長で校正している。このため、その寸法測長値は SI トレーサブルである。一方一般的にナノメートルオーダの測長における TEM の倍率校正には結晶試料の格子面間隔距離が物差しとして用いられる。結晶の格子面間隔距離

の中でも、バルクの Si {220} 面の格子面間隔距離はメートルの定義から長さを示す二次的な方法として利用し得ると国際度量衡委員会の長さ諮問委員会 (Consultative Committee for Length: CCL) により勧告されている [4]。このことから、Si を薄膜加工した試料の格子面間隔距離は特に SI トレーサブルな TEM の物差しとして用いられている。しかし TEM 観察に必要な試料への薄膜加工は Si の結晶構造に影響を与えうる [5, 6]。このことから、格子面間隔距離と同じオーダであるサブナノメートルの測長の倍率校正を行うには、薄膜加工が格子面間隔距離に与える影響を明らかにする必要があるが、その影響は未だ明らかではない。したがって現状の Si 薄膜の格子面間隔距離を物差しとする TEM による測長は、バルクと薄膜加工した Si の格子面間隔距離の間に未知の不確かさが存在する [6] ため、SI トレーサビリティが途絶した状態にある。そこで、微細加工技術の発展が著しい今後の産業の基盤となる測長技術確立のために、改めて薄膜加工した Si の格子面間隔距離への SI トレーサブルな校正が求められている。

2. 研究の目的

本研究は TEM によるサブナノメートルオーダの測長に国際的な整合性を持たせることを目的とする。これを達成するために、TEM で観察し得る Si 薄膜の格子面間隔距離に対する M-AFM による比較測長を介した SI トレーサブルな校正を目指した。加えて予備実験として、TEM の機構そのものを要因とする測長の不確かさ [7]、ならびに薄膜加工が Si 格子面間隔距離に及ぼす影響 [6] をそれぞれ実験的に評価した。

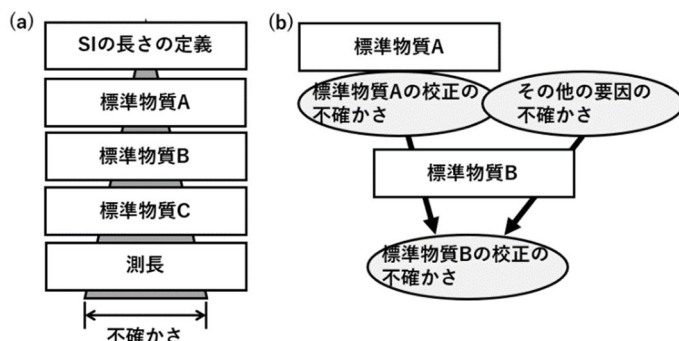


図 1 (a) SI トレーサビリティの概念図 (b) 標準物質ごとの不確かさのつけ方

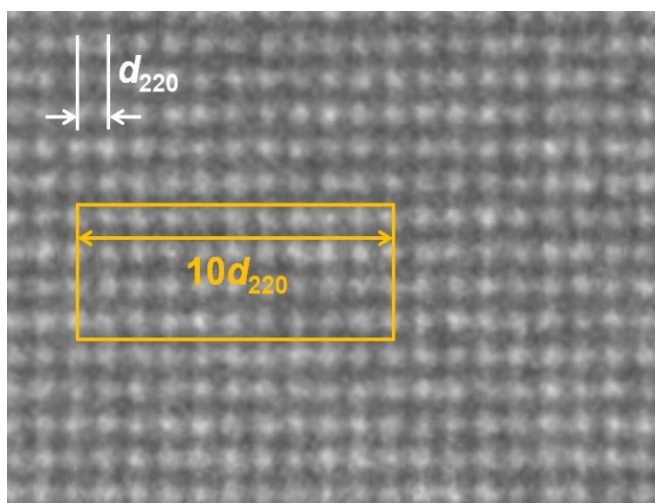


図 2 TEM により [001] 方位より撮影した Si の格子像と像中における $10d_{220}$ に相当する長さ

3. 研究の方法

(1) TEM に由来する測長不確かさの実験的評価

日本電子製 TEM(JEM-3000F, 加速電圧 300 kV)とこれに備え付けられた画素数 2048 pixels × 2048 pixels の相補型金属酸化膜半導体(Complementary Metal Oxide Semiconductor: CMOS)カメラ(TVIPS, TemCam-F216)により、Si 単結晶の[001]方位より電子線を入射して結像した格子像を取得した。このとき、倍率の経時変化、測長再現性、試料交換、電子線の入射方位、デフォーカス、電磁レンズの磁気履歴、投影レンズの収差、ならびに測長誤差に着目して、実験条件を意図的に変化させ、これらの操作をしなかった時に撮像した格子像と(220)面の格子面間隔 10 間隔分の長さ($10d_{220}$) (図 2)を pixels 単位で相対的に比較した。これにより種々の TEM の操作に由来する測長不確かさを実験的に評価し、TEM による測長を行う上で求められる測長値の不確かさの抑制に重要となる要因を洗い出した。

(2) 試料薄膜加工法が Si 格子面間隔距離に及ぼす影響の実験的評価

Si 単結晶を Ar イオン研磨、機械研磨、および粉碎の三種の方法で薄膜加工した。これらの試料の格子像を(1)と同様に TEM および CMOS カメラにより撮影し、pixels 単位で得たそれぞれの $10d_{220}$ から、薄膜加工法の違いによる Si の格子面間隔距離に及ぼす影響を相対的に比較した。加えて Ar イオン研磨で調製した試料についてはイオンビーム照射時間を変えて複数調製した試料の $10d_{220}$ から Ar イオン照射が Si 格子面間隔距離に与える影響についても比較した。

(3) M-AFM と TEM による標準物質試料壁面間隔の比較測長

Si 単結晶基板を電子線リソグラフィとプラズマエッチングにより加工して、TEM 観察方向に対して 80 nm から 500 nm の厚さを持ち 100 nm 間隔で並んだ凸状のパターンをもつ標準物質(図 3)を試作した。この凸状パターンの任意の壁面間隔を M-AFM により Si トレーサブルに測長したのち、同一個所を TEM で撮像することで、TEM 像中のピクセル一つの長さのメートル単位での倍率校正を行い、同じ TEM 像中に写る Si の格子面間隔距離の Si トレーサブルな測長を目指した。

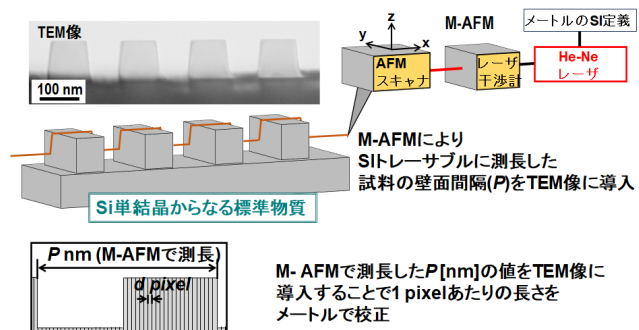


図 3 M-AFM と TEM による比較測長の模式図

4. 研究成果

(1) TEM に由来する測長不確かさの実験的評価

実験の結果、倍率の経時変化、中間レンズの磁気履歴、ならびに投影レンズの収差が測長値に不確かさを与える主要な要因であると評価された。これらを含めて JEM-3000F(加速電圧 300 kV)による Si 格子面間隔距離の測長値の相対拡張不確かさ($k=2$)は 5.5%と見積もられた。これらの不確かさ要因のうち、倍率の経時変化は実験ごとに倍率校正を行うことで無視し得る程度まで低減できたため、測長値の相対拡張不確かさは 3.2%まで低減することができた。さらなる TEM による測長値の不確かさの低減を目指すには、中間レンズの磁気履歴と投影レンズの収差の抑制が課題となることを明らかとした[7]。

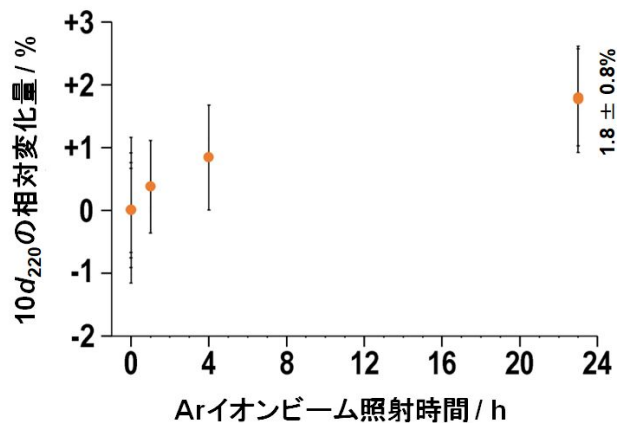


図 4 Ar イオンビーム(4.0 kV)照射時間の変化に伴う Si の $10d_{220}$ の相対変化量

(2) 試料薄膜加工法が Si 格子面間隔距離に及ぼす影響の実験的評価

粉碎法と機械研磨法で調製した試料間の格子面間隔距離には有意な差異が認められなかったが、Ar イオン研磨においてはイオンビーム(加速電圧 4.0 kV)の照射時間の増加にともない Si の格子面間隔距離が増加する傾向を明らかとした(23 h 照射で Ar イオンを照射しない試料に対して $10d_{220}$ が $1.8 \pm 0.8\%$ 増加, 図 4)。また、どの調製法においても試料最端部約 2 nm の領域はそれより内側と比較して格子面間隔がおおよそ 3-5%増加することを明らかとした(図 5)。この結果は、TEM によるサブナノメートルオーダの測長の精確性を確保するためには、倍率校正に用い

る Si 薄膜試料の加工法と格子面間隔距離を撮影する位置に対して、それぞれ適当な条件を明らかにする更なる研究が求められることを示唆する[6]。

(3) M-AFM と TEM による標準物質試料壁面間隔の比較測長

Si 単結晶基板を加工して試作した標準物質(図 3)の TEM 観察を行い、Si の格子面間隔を撮影し得る高倍率で M-AFM で値付けを行う凸状パタン壁面間隔を収めた像を取得し得ることを確認した。これにより M-AFM を介した TEM 像中の Si の格子面間隔距離への値付けの可能性を実証した。これに引き続き、TEM で撮像した同一部位の凸状パタン壁面間隔距離の M-AFM による測長の実証実験を目下遂行中である。結果としては残念ながら本研究実施期間内に TEM と M-AFM の比較測長の実証まで完遂できなかったが、比較測長に利用できる標準物質の整備までを達成することができた。今後ともこの研究については、この試作標準物質の改良を含めて引き続き精力的に発展させ目標を達成する所存である。

加えて、試作標準物質の試料厚さの異なる凸状パタン群を利用して、300 kV-TEM で格子像が取得し得る試料厚の限界についての実験的な見積もりを行い、試料加工の影響が抑えられると考えられる厚膜試料の格子面間隔距離の倍率校正への利用を目指した研究の基礎データ収集も行った[8]。さらに、試作標準物質底部による電子線の遮蔽に起因して、この標準物質の TEM 観察において特異な電子回折図形ならびに収差に起因する像[9]があらわれることについても見出した。

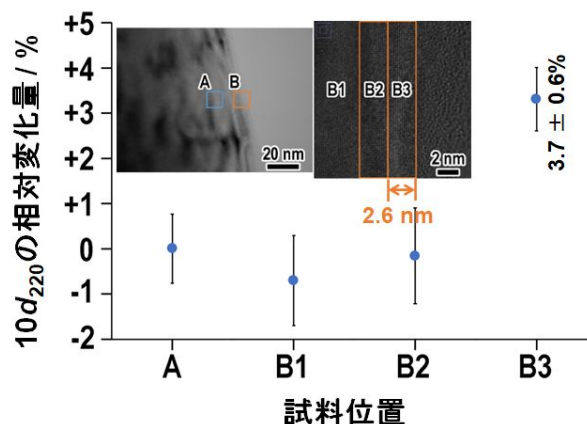


図 5 機械研磨により得た Si 薄膜試料の、試料端部からの位置の変化に伴う Si の $10d_{220}$ の相対変化量

<引用文献>

- [1] International Roadmap for Devices and Systems, 2022 edition, Metrology (IEEE, 2022).
- [2] I. Misumi, S. Gonda, O. Sato, et al., *Meas. Sci. Technol.*, **17**, 2041 (2006).
- [3] R. Kizu, I. Misumi, A. Hirai, K. Kinoshita, S. Gonda, *Meas. Sci. Technol.*, **29**, 075005 (2018).
- [4] A. Tacoot, H. Bosse, R. Dixson, *Meas. Sci. Technol.*, **31**, 121001 (2020).
- [5] D. Morikawa, M. Ageishi, K. Sato, K. Tsuda, M. Terauchi, *Microscopy*, **70**, 394 (2021).
- [6] K. Kobayashi, I. Misumi, K. Yamamoto, *Ultramicroscopy*, **238**, 113537 (2021).
- [7] K. Kobayashi, I. Misumi, K. Yamamoto, *Meas. Sci. Technol.*, **32**, 095011 (2021).
- [8] K. Kobayashi, R. Kizu, in preparation.
- [9] 小林慶太, 木津良祐, 日本顕微鏡学会第 79 回学術講演会 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kobayashi Keita, Misumi Ichiko, Yamamoto Kazuhiro	4. 巻 32
2. 論文標題 Experimental evaluation of uncertainty in sub-nanometer metrology using transmission electron microscopy due to magnification variation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Measurement Science and Technology	6. 最初と最後の頁 095011 ~ 095011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6501/ac03e4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 小林 慶太	4. 巻 60
2. 論文標題 透過電子顕微鏡による測長技術開発の動向	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 計測と制御	6. 最初と最後の頁 608 ~ 616
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11499/sicejl.60.608	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Misumi Ichiko, Kizu Ryosuke, Itoh Hiroshi, Kumagai Kazuhiro, Kobayashi Keita, Sigehuzi Tomoo	4. 巻 5
2. 論文標題 Research Activities of Nanodimensional Standards Using Atomic Force Microscopes, Transmission Electron Microscope, and Scanning Electron Microscope at the National Metrology Institute of Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanomanufacturing and Metrology	6. 最初と最後の頁 83 ~ 90
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s41871-021-00119-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kobayashi Keita, Misumi Ichiko, Yamamoto Kazuhiro	4. 巻 238
2. 論文標題 Effect of specimen processing for transmission electron microscopy on lattice spacing variation in Si specimens	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Ultramicroscopy	6. 最初と最後の頁 113537 ~ 113537
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ultramic.2022.113537	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 小林 慶太、 三隅 伊知子、 山本 和弘
2. 発表標題 透過電子顕微鏡を用いた測長における倍率変動による測長値の不確かさの実験的評価
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林慶太, 三隅伊知子, 山本和弘
2. 発表標題 透過電子顕微鏡によるナノメトロロジーにおける測長値の不確かさ要因についての検討
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第63回シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小林 慶太、 三隅 伊知子、 山本 和弘
2. 発表標題 倍率校正標準としてのSi 格子面間隔距離の試料条件に依存した変動の実験的評価
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第79回学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小林慶太, 木津良佑
2. 発表標題 電子線を遮蔽する構造をもつ試料のTEM観察で現れる特異な回折図形と回折波からなる像
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第79回学術講演会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	木津 良祐 (Kizu Ryosuke) (40760294)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員 (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------