

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 27 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560029

研究課題名(和文)ヘリウムイオン顕微鏡の二次電子信号評価シミュレーション

研究課題名(英文)Simulation for evaluation of secondary electron signals in helium ion microscope

研究代表者

大宅 薫(OHYA, Kaoru)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・教授

研究者番号：10108855

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：イオン・固体相互作用の微視的モデルに基づく二次電子放出のシミュレーションコードを開発し、二次電子収量の入射エネルギー依存性、入射角依存性、材料依存性、放出二次電子のエネルギー分布や角度分布を評価して、走査電子顕微鏡や従来のガリウムイオン顕微鏡に対する優位性を示した。

シリコン基板上の百ナノメートル程度の周期的溝構造の表面形状コントラストや数十～数百ナノメートル厚の酸化膜の帯電コントラストを観測し、実形状、実照射条件でのシミュレーションと比較して、ヘリウムイオン顕微鏡の像形成詳細メカニズムを明らかにした。結晶方位コントラストや照射ダメージについても検討し、ナノデバイス計測性能を評価した。

研究成果の概要(英文)：A simulation code based on a microscopic model for ion-solid interactions was developed for secondary electron (SE) emission of samples impacted by an ion beam. The code can calculate emission characteristics such as the SE yield and the emission energy and angle of SEs. The characteristics showed better spatial resolution and clearer material, topographic and voltage contrasts in helium ion microscope (HIM), compared with scanning electron microscope and gallium ion microscope. Realistic sample surfaces, such as a 100 nm-high trench-structured Si surface and 10-100 nm thick SiO₂ films on Si were irradiated with He ion beams to make SE profiles. The comparisons with the observation images and calculated profiles revealed the formation mechanisms of edge and charging contrasts in HIM. Channeling contrast of crystalline sample images were modeled by molecular dynamics. Sample damages by the ion irradiation were simulated by using a dynamic Monte Carlo simulation code.

研究分野：電子、イオン、プラズマと固体との相互作用のシミュレーション

キーワード：イオン顕微鏡 二次電子放出 ヘリウムイオン シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体デバイスの更なる微細化に向けて、ナノメートル領域の寸法計測や超微細な欠陥を評価するツールの開発が急がれている。現在の製造工程における微細パターン計測に走査電子顕微鏡(SEM)が使用されているが、その測長限界が 10nm 程度と考えられ、精密かつ安定したナノ構造計測の難しさが顕在化していた。

(2) 走査イオン顕微鏡(SIM)は、SEM と同様に、ビーム走査によって試料表面から放出される二次電子を輝度信号として二次元像を形成する。従来のガリウム(Ga)イオンビームを用いた SIM に加えて、最近、高輝度のヘリウム(He)イオン源を搭載した SIM (HIM と呼ぶ)が開発された。He イオンは電子に比べて約 7 千倍重いので、原理的には同じ加速電圧の SEM より分解能が高い。また、SEM で障害となる回折収差による集束ビーム径や焦点深度の制限がないことから、超微細パターン計測のブレークスルーになる可能性を秘め、発表後大きな関心を集めていた。

(3) He イオンの質量は Ga イオンの 1/10 以下であるため、HIM は従来の Ga-SIM より SEM に近い性質をもつことが予想される。しかし、イオン照射による二次電子放出特性に未だ不明な点が多く、観測結果を説明する理論モデルの構築とそれに基づいた解像度や各種画像コントラストなど、HIM の総合的特性評価が望まれていた。

2. 研究の目的

(1) HIM における二次電子放出特性の理論モデルを構築し、それに基づく二次電子像評価シミュレーションコードを開発する。

(2) HIM 装置における解像度の限界や得られた画像の正しい評価のために、信号発生領域の拡がり、二次電子収量の入射エネルギー依存性、入射角依存性、材料依存性、二次電子のエネルギー分布と角度分布などの二次電子放出基本特性を明らかにする。

(3) 実形状および実材料の試料モデルを用いた各種画像コントラスト(材料コントラスト、表面形状コントラスト、結晶方位コントラスト、帯電コントラスト等)の詳細な特性評価を行い、従来の SEM や Ga-SIM の特性と比較する。

(4) 半導体デバイスやマイクロマシン等の実評価において、He イオン照射による絶縁膜の帯電や材料表面の照射ダメージも問題となるため、それら評価のためのシミュレーションコードを作成し、帯電や照射ダメージによって輝度信号となる二次電子収量の変化など、精密かつ安定した画像の再構成への影響を評価する。これら評価によって、ナノメートル領域の超微細構造材料計測に対するヘリウムイオン顕微鏡の性能を総合的に評価する。

3. 研究の方法

固体表面からの二次電子放出は、入射粒子による初期(二次)電子の生成、試料内での増倍(電子カスケード)と拡散、表面電位障壁を越えて真空への放出、それぞれの過程をモデル化し、シミュレーションコードを作成した。17種の固体材料内での He イオンの電子生成断面積を、部分波展開法を用いて広範囲(1 eV~50 keV)なエネルギーで計算し、入射イオンの各固体内での軌道追跡するシミュレーションコードを作成した。これを、従来の電子ビームによる二次電子放出のシミュレーションと結合することによって、イオンビームによる二次電子放出のシミュレーションが可能となった。これを用いて、

(1) 二次電子放出特性(二次電子収量と二次電子のエネルギー分布と角度分布)、
を評価した。また、100 nm 程度の段差およびトレンチ構造を Si 基板上に形成して、
(2) 実形状、実材料の像コントラスト(材料、表面形状及び電圧コントラスト)、
の評価を行った。

絶縁物内の二次電子とその生成場所で発生した正孔、さらに注入されたイオンがつくる電荷分布から絶縁物と真空における電界分布を計算し、さらに二次電子の真空中の軌道解析をシミュレーションコードに追加して、Si 基板上の SiO₂ 薄膜(<100 nm 厚)を照射して、

(3) 絶縁膜帯電による二次電子収量の変化と帯電コントラスト、
の評価を行った。

分子動力学シミュレーションコードに二次電子生成と電子カスケード過程を半経験モデル(イオン軌道上で電子的エネルギー損失に比例した二次電子生成+表面へ向かう指数関数的な減少)で近似して導入することによって、

(4) イオン反射率と二次電子収量の結晶方位依存性と結晶方位コントラスト、
の評価を行った。

二体衝突近似モンテカルロシミュレーションコードに表面の損耗・堆積および材料組成変化を追加して、

(5) イオンビーム照射による多層膜材料の混合と変形、
を計算し、H、Ne および Ga イオンビームによる照射ダメージを比較して評価した。

4. 研究成果

(1) 二次電子放出特性(二次電子収量と二次電子のエネルギー分布と角度分布)

二次電子収量は通常の SEM で使う 10 keV の電子ビームによる収量の 5~20 倍多く、最近開発された低電圧(<1 keV)SEM よりも多かった(図 1)。Ga-SIM と比べても、特に原子番号 Z₂ の大きい材料では 100 倍近くの違いがあり、これは照射ダメージを抑制する低照射条件でも、S/N 比の高い像が得られることを示唆する。

二次電子収量の材料(Z₂)依存性(図 1)は

Ga イオンビームと違い、電子ビームに類似した依存性をもった。一方、二次電子のエネルギーには電子ビームで見られる高エネルギー成分がなく、Ga イオンビームとの中間の分布を示した。二次電子の角度分布は電子及び Ga イオンビームと大差なく、ほぼ余弦分布であった。

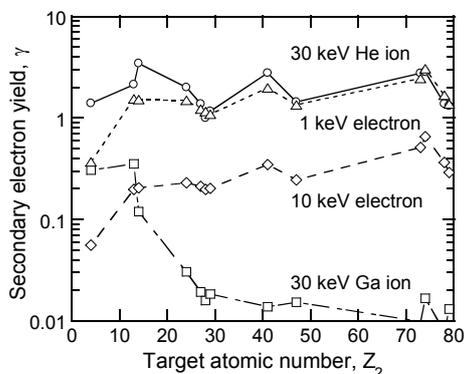


図 1. 二次電子収量の材料原子番号(Z_2)依存性

(2) 実形状、実材料の像コントラスト (材料、表面形状及び電圧コントラスト)

Si 基板上に段差 (高さ <100 nm) を形成し、表面の各点 (0.4nm ごと) を照射して各点の二次電子収量から段差近傍のコントラスト変化を検討した。電子ビームや Ga イオンビームに比べて遥かに小さな広がり度で基板に侵入するため (図 2)、段差の側壁からの二次電子放出によるエッジピークが電子ビームや Ga イオンビームに比べて遥かに高く (平坦面の 12 倍)、鋭く (半幅幅 3.6 nm) なった (図 3)。また、周期的トレンチ構造表面を実際に HIM で観測して (蘭デルフト工科大学の協力による)、この鋭いエッジピークの特実を実証した。

Si 基板上の一部に数 V~数 10 V の正負電圧を印加、表面の各点を照射して放出二次電子の真空中における軌道を追跡し、表面に戻る電子を除いた正味の二次電子収量の変化から電圧コントラストを検討した。二次電子の脱出深さ内での He イオンの広がりが小さく二次電子のエネルギーが低いため、10 V 以下の電圧でも境界部分にコントラスト変化が見られた。

(3) 絶縁膜帯電による二次電子収量の変化と帯電コントラスト

イオンビームによる絶縁物の帯電には内部に留まるイオン (正電荷) が寄与し、一般に二次電子生成によって材料中に残された正孔とともに絶縁物表面を正に帯電させる。電子ビームでは注入される電子が負電荷をもつために、そのエネルギーによって表面電位は正から負へ、また正へと複雑に変化する。HIM に使用される数 10 keV の He イオンは Ne や Ga イオンより材料中に深く侵入し、そ

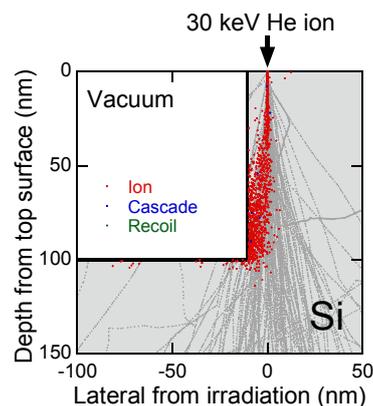


図 2. 段差近傍から放出される二次電子の生成位置と入射 He の軌道

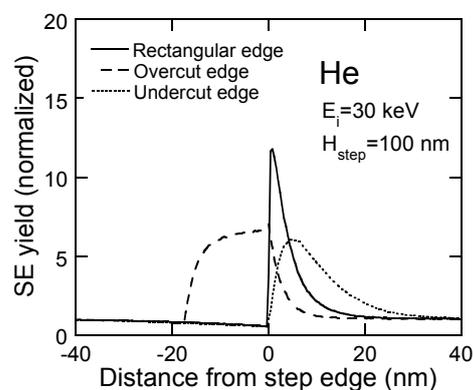


図 3. 段差近傍の二次電子収量の変化

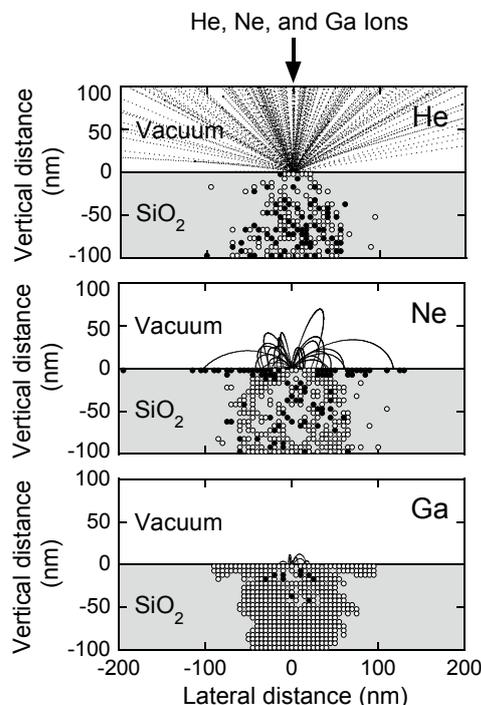


図 4. 各種イオンを照射した Si 基板上の SiO₂ 膜の帯電と二次電子の真空中の軌道。膜中の白丸は蓄積正電荷、●は負電荷。

のほとんどが数 100 nm 以下の SiO_2 膜を透過するため帯電への寄与は小さい (図 4)。

Ne や Ga イオンビームを照射し続けると、表面電位が上昇し、それが二次電子のエネルギーを超えるとすべての二次電子が表面に戻り、二次電子収量はゼロとなるため、Ne-SIM や Ga-SIM の表面像は消失する (図 5)。一方、HIM では表面電位が数 V 程度で飽和するため、正帯電による二次電子収量の低下は数%で、長時間の観測でも鮮明な表面像が得られることが分かった。実際に HIM で観測した Si 基板上的酸化膜には低照射量での帯電コントラストの低下が観測された。

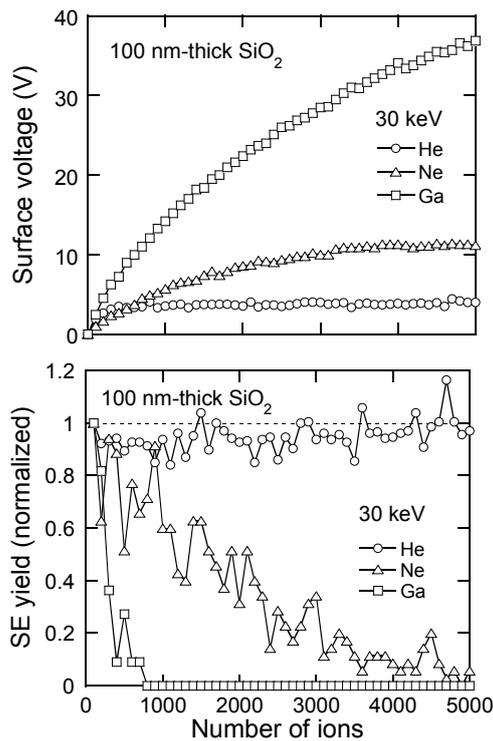


図 5. 各種イオンを照射した表面の電位と二次電子収量の照射回数に対する変化

(4) イオン反射率と二次電子収量の結晶方位依存性と結晶方位コントラスト

厚さ 70 nm と 350 nm の W 結晶の単位セル上部のランダムな位置にイオンを異なる角度で入射して、反射率と二次電子収量の変化のイオン種(He, Ne, Ga)による違いを調べた。通常の周期的境界条件と、モース型(W-W)および ZBL(He-W, Ne-W, Ga-W)相互作用ポテンシャルを用いて入射イオンと W 原子の運動を分子動力学法で解析した。結晶軸方向に入射したイオンが W 原子間を振動しながら深く侵入する現象 (チャネリング) を観測した (図 6)。Ga のような重イオンでは W 原子による散乱が大きく、その軌道は横方向に広がり、侵入が浅くなった。

反射率の入射角に対する緩やかな増加に結晶軸方向に入射したときのシャープな減

少が重畳し、100 nm 以下の薄い膜でも結晶方位コントラストが HIM 像に鮮明に表れることを示唆した (図 7)。W 原子の反跳により入射角に対する変化が不鮮明となり、照射とともに結晶方位コントラストが不鮮明になることを示した。二次電子収量については、入射イオンの軌道に沿って電子的エネルギー損失に比例して生成され、それが表面へ向かって指数関数的に減少するとして、その入射角による変化から結晶方位コントラストを評価した。イオン反射率とは異なり He イオンで結晶軸方向での減少が小さく、Ga イオンでより鮮明に表れたが、二次電子の結晶中の軌道効果がモデルに含まれていないので、今後、より詳細な検討が必要である。

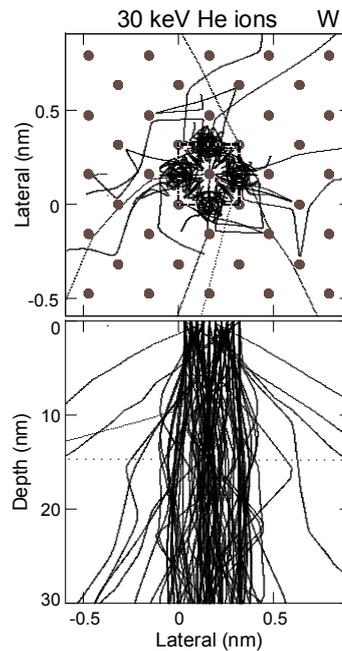


図 6. W の結晶軸方向に入射した He イオン軌道

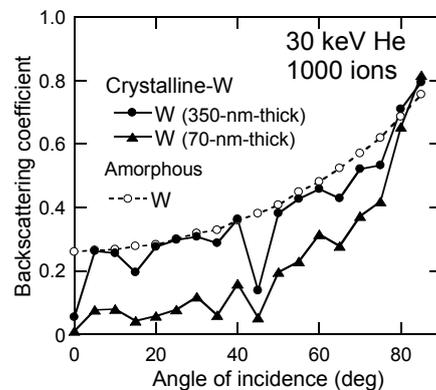


図 7. He 照射による W 結晶の二次電子収量の入射角依存性

(5) イオンビーム照射による多層膜材料の混合と変形

イオンビームは SEM で使用される電子ビームとは違い、その運動エネルギーのほとんどが試料表面近傍の原子に付与されるため、表面像取得時の照射ダメージを評価する必要がある。特に、EUV リソグラフィに使用される多層膜マスクはその構造が微細で(図 8)、その精度が重要であるため、He イオンビームのほか、Ne と Ga イオンビームも照射して膜の変形と膜材料の混合について評価した。結晶構造変化には分子動力学シミュレーションがよいが、計算時間やシミュレーション領域の制限によって、実形状での評価が難しい。ここでは、二体衝突モンテカルロシミュレーションに表面の損耗・堆積および材料組成変化を追加して評価した。

HIM で使用されるエネルギーの He イオンは弾性衝突による多層膜中の原子へのエネルギー付与が小さい上、そのほとんどが膜を通過してそのエネルギーの大半を基板で失うため、照射による膜に与える影響は小さい(図 9)。Ga イオンを使用すると照射とともに Mo 膜と Si 膜の混合が進み、照射表面の掘れ込みとその周辺部の隆起など表面形状に大きな変化が見られた(図 10)。一方、He イオンビームでは像観測条件を超える大きな照射量で膜間の境界で混合が現れたものの、通常の観測では表面形状の変化は無視できることが分かった。

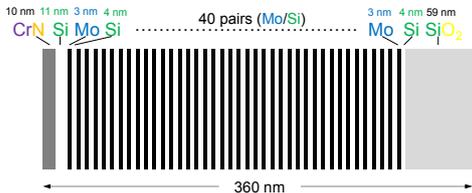


図 8. EUV リソグラフィ用 Mo/Si 多層膜モデル

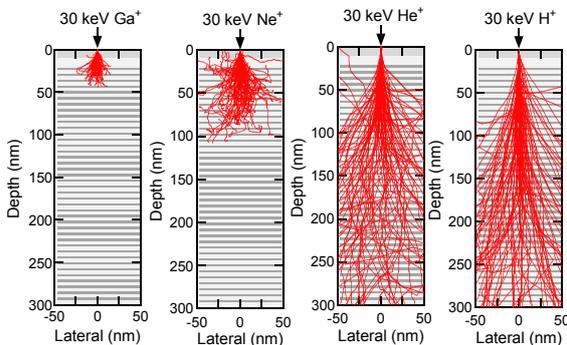


図 9. 各種イオンビームの EUV マスク内軌道

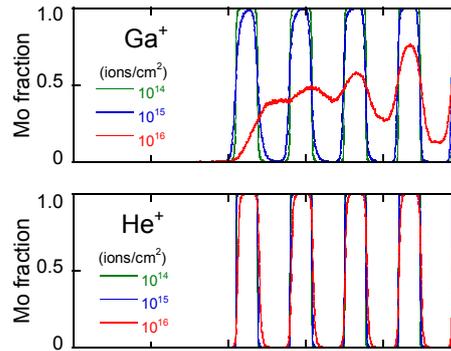


図 10. 30 keV の Ga と He の異なった照射量での Mo 組成変化

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Kaoru Ohya, Simulation of insulating-layer charging on a conductive substrate irradiated by ion and electron beams, *Journal of Vacuum Science & Technology B*, 査読有, Vol. 32, 2014, 06FC01 (8pp)
DOI: 10.1116/1.4896337
- ② Kaoru Ohya, Simulation of secondary electron emission from a stepped surface in scanning ion microscopes, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有, Vol. 53, 2014, 06JB01 (5pp)
DOI: 10.7567/JJAP.53.06JB01
- ③ K. Ohya, T. Yamanaka, Modeling secondary electron emission from nanostructured materials in helium ion microscope, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 査読有, Vol. 315, 2013, 295-299
DOI: 10.1016/j.nimb.2013.03.033

[学会発表] (計 20 件)

- ① Kaoru Ohya, Damage simulation of EUV-multilayered mask under focused ion beam irradiation, *SPIE Advanced Lithography 2015*, 2015. 2. 22-26, San Jose (USA).
- ② 大宅 薫, 電子・イオン照射による固体の二次電子放出, 日本学術振興会「荷電粒子ビームの工業への応用第 132 委員会」第 4 回荷電粒子ビーム基礎講座(招待講演), 2015. 2. 6, 産業技術総合研究所臨海副都心センター(東京都・港区)
- ③ 大宅 薫, イオンビームによる照射ダメージのダイナミックモンテカルロシミュレーション, ナノテスト学会第 5 回先端計測技術研究会, 2015. 1. 30, 大阪大学東京オフィス(東京都・千代田区)

- ④ 大宅 薫, 集束イオンビームによる多層膜の照射ダメージのシミュレーション, 第34回ナノテストニングシンポジウム, 2014. 11. 12-14, 千里ライフサイエンスセンター (大阪府・豊中市)
- ⑤ Kaoru Ohya, Simulation Study of Crystalline Orientation Effect in Scanning Ion Microscopes, 7th International Symposium on Surface Science, 2014. 11. 2-6, Kunibiki Messe (Shimane・Matsue)
- ⑥ Kaoru Ohya, Helium ion beam charging of an oxide layer on a silicon substrate: a comparison between observed and Monte Carlo-simulated results, 19th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, 2014. 9. 14-19, Leuven (Belgium)
- ⑦ Takuya Yamanaka, Modelling and observation of a trench pattern on a silicon substrate in helium ion microscope, 19th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, 2014. 9. 14-19, Leuven (Belgium)
- ⑧ 大宅 薫, シミュレーションによるイオン顕微鏡の二次電子像コントラストの理解, ナノテストニング学会第4回先端計測技術研究会, 2014. 8. 22, 大阪大学東京オフィス (東京都・千代田区)
- ⑨ Kaoru Ohya, Charging Simulation of Insulating Layers on a Conducting Substrate Irradiated by Ion and Electrons, 58th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication, 2014. 5. 27-30, Washington DC (USA)
- ⑩ 大宅 薫, イオンビーム照射による固体表面の二次電子放出と帯電のシミュレーション, ナノテストニング学会第3回先端計測技術研究会, 2014. 2. 14, 大阪大学東京オフィス (東京都・港区)
- ⑪ Kaoru Ohya, Modeling Ion Induced Secondary Electron Emission in Scanning Ion Microscopes, 9th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials Devices, 2013. 12. 3-6, Sheraton Kona (USA)
- ⑫ Kaoru Ohya, Modeling Positive and Negative Charging of an Insulating Layer under keV Electron Irradiation, 9th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials Devices, 2013. 12. 3-6, Sheraton Kona (USA)
- ⑬ 山中 卓也, 走査イオン顕微鏡によるラインパターン計測のシミュレーション, 第33回ナノテストニングシンポジウム, 2013. 11. 13-15, 千里ライフサイエンスセンター (大阪府・豊中市)
- ⑭ 大宅 薫, KeV電子ビーム照射による絶縁膜帯電のシミュレーション, 第33回ナノテストニングシンポジウム, 2013. 11. 13-15, 千里ライフサイエンスセンター (大阪府・豊中市)
- ⑮ Kaoru Ohya, Modeling Secondary Electron Emission from Line Edge Patterns in Scanning Ion Microscopes, 26th International Microprocess and Nanotechnology Conference, 2013. 11. 5-8, Royton Sapporo (Hokkaido・Sapporo)
- ⑯ Kaoru Ohya, Modeling secondary electron emission in scanning He ion microscope: comparison with scanning Ga ion and electron microscopes, 19th International Vacuum Congress, 2013. 9. 9-13, Paris (France)
- ⑰ 大宅 薫, ヘリウムイオン顕微鏡の二次電子信号評価シミュレーション, ナノテストニング学会第2回先端計測技術研究会, 2013. 8. 26, 大阪大学東京オフィス (東京都・港区)
- ⑱ Kaoru Ohya, Modeling secondary electron emission in scanning ion microscope, Interdisciplinary Surface Science Conference, 2013. 3. 25-28, Nottingham (UK).
- ⑲ Kaoru Ohya, Modeling ion-induced secondary electron emission in scanning ion microscopes, SPIE Advanced Lithography 2013, 2013. 2. 24-28, San Jose (USA)
- ⑳ Kaoru Ohya, Modeling Secondary Electron Emission from Nanostructured Materials in Helium Ion Microscope, 25th International Conference on Atomic Collisions in Solids, 2012. 10. 21-25, Kyoto University (Kyoto-shi, Kyoto)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大宅 薫 (OHYA, Kaoru)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・教授

研究者番号：10108855

(2) 研究分担者

山中 卓也 (YAMANAKA, Takuya)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・技術専門職員

研究者番号：00546335