

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18K04932

研究課題名(和文) SNDMを用いた誘電率ナノイメージング手法の開発と材料・デバイス評価への展開

研究課題名(英文) Development of Dielectric Constant Nano-Imaging Method Using SNDM and its Application to Materials and Device Characterization

研究代表者

平永 良臣 (Hiranaga, Yoshiomi)

東北大学・電気通信研究所・准教授

研究者番号：70436161

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：ナノスケール領域における誘電率イメージングは、微細化・高性能化が進む電子デバイスの発展と相まって、その重要性が今後ますます高まる評価技術の一つとなるものと考えられる。そこで本研究では 10^{-2} Fオーダーという非常に高い静電容量検出感度を有する走査型非線形誘電率顕微鏡(SNDM)を用いて、線形誘電率のイメージングを可能とする手法(C/z-SNDM法)の開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究を通じてC/z-SNDM法がナノスケール領域における誘電率分布を可視化する手法として有効であることが示された。本手法は今後様々な様々な測定対象に展開されてゆくと考えられる。具体的には、微細化するFETデバイス等における酸化膜のナノスケール評価への展開が期待される。また、近年開発が盛んなナノコンポジット材料やナノ結晶材料、ナノシート材料などの新奇ナノ材料も、本手法が有用となる測定対象の例として挙げることができる。

研究成果の概要(英文)：Dielectric constant imaging in the nanoscale region is expected to become one of the most important evaluation techniques in the future, in conjunction with the development of electronic devices that are becoming increasingly miniaturized and have higher performance. In this study, we developed a method for linear dielectric constant imaging (C/z-SNDM method) using a scanning nonlinear dielectric constant microscope (SNDM) with extremely high capacitance detection sensitivity in the order of 10^{-2} F.

研究分野：誘電体工学

キーワード：プローブ顕微鏡 走査型非線形誘電率顕微鏡 誘電率分布計測 半導体計測

1. 研究開始当初の背景

電子デバイスの微細化・高性能化が進む中、微細加工のプロセスダメージや材料のサイズ効果などの問題が顕在化しており、材料やデバイスの微視的な物性の評価技術の重要性はますます高まっていると言える。これを可能とする手法としてプローブ顕微鏡が広く用いられている。特に電荷や電流の空間分布をナノスケールで観察する手法としてプローブ顕微鏡 (SPM) は極めて有効である。しかし、誘電率に関しては、十分に高い空間分解能と感度で観察する現実的な手法が現在のところ皆無に等しい。走査型容量顕微鏡 (SCM) は静電容量の空間分布を可視化することができる顕微鏡であるが、通常の測定では電界に対する容量変化 (非線形容量変化) が測定されることがほとんどである。計測対象よりもはるかに大きい寄生容量や測定感度の問題があるため、静電容量の絶対値あるいは誘電率を測定するためにこの手法が用いられることは非常に稀である。

一方、走査型非線形誘電率顕微鏡 (SNDM) も局所的静電容量を可視化できるプローブ顕微鏡の一つである。SNDM は SCM より高い容量検出感度 ($\sim 10^{-22}$ F) を有する。例えば先端半径 20 nm 程度の探針を用いた場合には 1×10^{-18} F 以下の静電容量を検出する必要があるが、SNDM の感度はこれを行うのに十分である。しかしながら、SNDM に関しても、通常測られているものは $\partial C/\partial V$ に対応する信号 (非線形誘電率) である。線形の誘電率の測定に関する報告もわずかにあるが、従来法では寄生容量の影響を受けやすく、実際の応用事例は極めて少ない。

2. 研究の目的

本研究では SNDM の高い容量検出感度を生かしつつ、寄生容量の影響を大幅に低減して線形誘電率の分布をナノスケールで精度良く測定することが可能な新たな手法 ($\partial C/\partial z$ -SNDM 法) の開発を行った。具体的には以下の研究に取り組み、 $\partial C/\partial z$ -SNDM 法の基礎を構築することを目的とした。

- ・線形誘電率の定量計測の方法の確立
- ・表面形状アーティファクト補正方法の開発
- ・高分解能化
- ・多様な測定対象への展開

3. 研究の方法

開発した $\partial C/\partial z$ -SNDM のシステム構成を図 1 に示す。本システムの測定プローブは従来型の SNDM と同一で LC 共振器を含む自励発振型のプローブで、その LC 共振器部に SPM 用カンチレバーを取り付けている。 $\partial C/\partial z$ 測定モードではこのプローブを圧電アクチュエータによって交流的に振動させる。このとき探針先端と誘電体サンプル表面のギャップ長が周期的に変化するため、プローブ先端容量 C_{tip} も周期的に変化する。このとき SNDM プローブは C_{tip} の周期的変化に対応した FM 信号を出力する。この FM 信号を復調した後、圧電アクチュエータの励振信号を参照信号としてロックインアンプによって検出することによって C_{tip} の変化を測定することが出来る。 C_{tip} のギャップ長依存性は図 2 に示すようにサンプルの誘電率に依存するため、得られたロックインアンプ信号強度からサンプルの誘電率を算出することが出来る。

本手法に関する基礎実験を行うため、誘電率の異なる複数の誘電体膜を積層したテスト用サンプルを用意した。具体的には SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 、 Nb_2O_5 の 4 種類の酸化膜を積層したのち収束イオンビーム加工によって断面を露出させたサンプルである。表 1 に各層の酸化膜の誘電率をインピーダンスメータによってあらかじめ測定した結果を示す。

さらに本研究では、酸化膜以外の計測対象への $\partial C/\partial z$ -SNDM 計測の展開についても研究した。具体的には半導体デバイスに対するドーパントプロファイル計測への展開である。これを実証するため、異なる不純物濃度 (1×10^{16} - 3×10^{18} cm^{-3}) の 5 層のエピタキシャル成長層を有する校正用 Si サンプル (n 型) を用意し、 $\partial C/\partial z$ -SNDM による計測を試みた。

4. 研究成果

図 3 に酸化膜積層膜断面サンプルの $\partial C/\partial z$ -SNDM 観察結果を示す。図 3(b) に示す基本波 (1ω) 像において、各層の誘電率の違いに由来したコントラストが観察された。コントラストの暗い部分は誘電率が低い部分を、明るい部分は誘電率が高い部分を表している。この像において各誘電体膜の明暗は表 1 に示す各誘電体の誘電率の大小関係と整合しており、本手法によって確かに誘電率分布が観察できることが分かった。一方で、図 3(a) の表面形状像においても見られる断面加工における加工筋などの凹凸に対応したコントラストが図 3(b) においても見られており、これらはアーティファクトである。一方、図 3(c)、(d) に示す 2ω および 3ω 像においても誘電率に対応したコントラストが観察されており、これらの高調波像を用いても誘電率分布を評価できることが明らかとなった。これらの像においても表面形状由来のアーティファクトは見られるが、 1ω 像に比べればそれらは若干抑制されているようにも見える。

得られた各 $\partial C/\partial z$ -SNDM 高調波像の断面プロファイルを図4に示す. 高調波次数が高くなるに従い信号強度が減少し信号対ノイズ (S/N) 比は低下するものの, 各層の境界におけるプロファイルの急峻度は向上している. これは後に示すように, 高調波信号では探針側面の影響が相対的に小さくなる効果によるものである. このことから, 測定 of S/N 比が改善されれば, 高調波像観察を通じて高分解能化が可能であることが示唆される.

図5には各誘電率のサンプルに対する容量変化 ΔC の理論値と実験的に得られた周波数偏移 Δf の関係を示す. $1\omega \sim 3\omega$ のいずれの信号においても, 理論値と実験値との間には直線的な関係が確認された. このことは, 標準試料を用いた校正によって誘電率の定量的評価が可能であることを表している.

加えて, 探針の形状が測定結果に与える影響について数値シミュレーションにより調べた. 図6は探針側面と探針の中心軸がなす角度を θ とし, θ を変えたときに応答信号強度がどのように変化するかを計算した結果である. グラフより 1ω 信号は θ によっても信号強度が変化してしまう一方, $2\omega, 3\omega$ の信号強度は θ の変化の影響をほとんど受けないことが分かる. これは, 高調波測定モードによって高分解能化, および定量評価における周辺部由来のバックグラウンド信号の低減が可能であることを示す結果であると考えられる.

続いて, 半導体サンプル計測への展開について述べる. 図7は従来法である $\partial C/\partial V$ 測定および本研究提案手法である $\partial C/\partial z$ 測定によるn-Si階段状サンプルの測定結果である. いずれの測定法においてもドーパント濃度に依存したコントラストが観察された. 但し, $\partial C/\partial V$ 像においては, キャリア濃度の増加に対し信号強度が減少する, コントラストリバーサル現象が観察された. 一方, $\partial C/\partial z$ -SNDMにおいては, $1\omega \sim 3\omega$ 像のいずれにおいてもキャリア濃度とともに信号強度が単調に増加し, コントラストリバーサルが回避できていることが示された. 加えて, SNDMの極めて高い静電容量検出感度によって, 信号強度の相対的に弱い高調波像の鮮明な画像化も可能であることが分かった. また, $\partial C/\partial V$ 像においてコントラスト差がやや不鮮明な $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ と $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ の境界が $\partial C/\partial z$ 像においては明瞭に可視化されていることは, これらの手法における相補性の一端を表している.

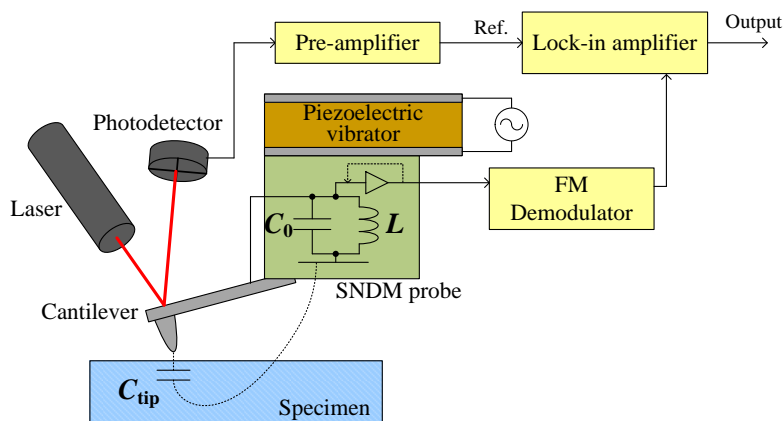


図1 $\partial C/\partial z$ -SNDM のシステム構成

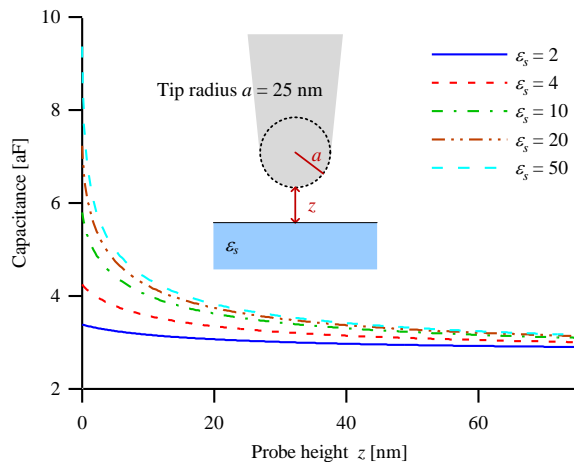


図2 探針-誘電体サンプルの静電容量の空隙依存性

表1 インピーダンスメータにより測定した各誘電体サンプルの誘電率

| Film | Permittivity at 1 MHz |
|--------------------------------|-----------------------|
| SiO ₂ | 3.9 |
| Al ₂ O ₃ | 7.9 |
| ZrO ₂ | 20.0 |
| Nb ₂ O ₅ | 38.3 |

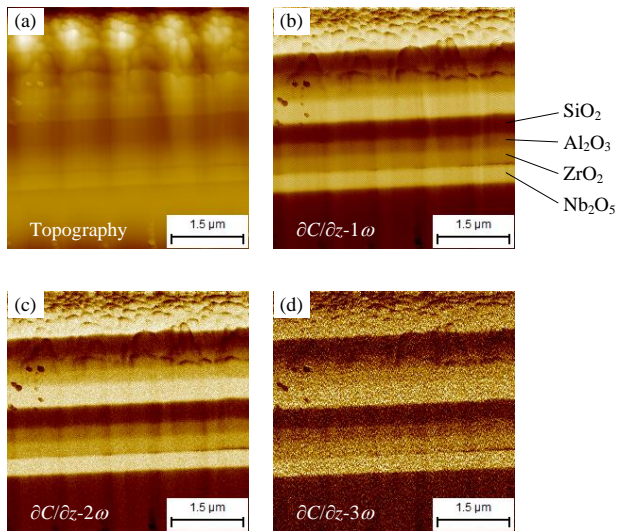


図3 酸化膜積層サンプルの $\partial C/\partial z$ -SNDM 観察結果
(a) 表面形状像 (b) 1ω 像 (c) 2ω 像 (d) 3ω 像

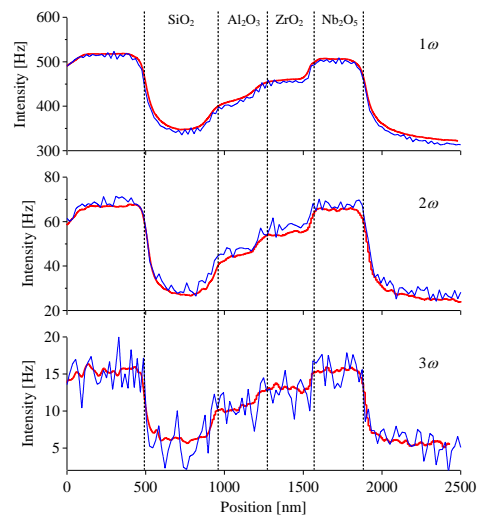


図4 酸化膜積層サンプルの $\partial C/\partial z$ -SNDM 像の断面プロファイル

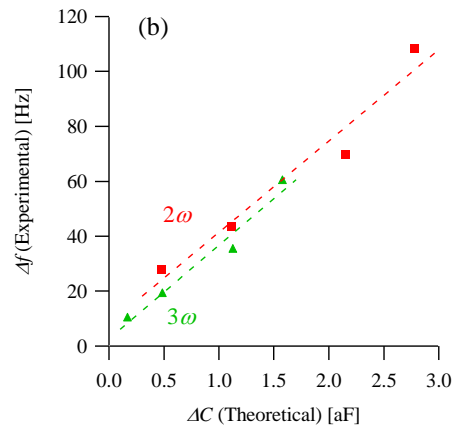
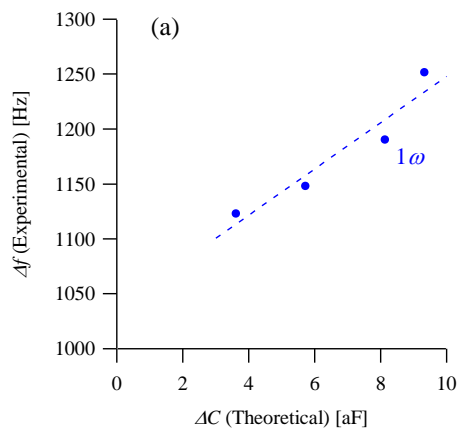


図5 静電容量変化 ΔC の理論値と周波数偏移 Δf の実験値の関係
(a) 1ω 信号 (b) 2ω および 3ω 信号

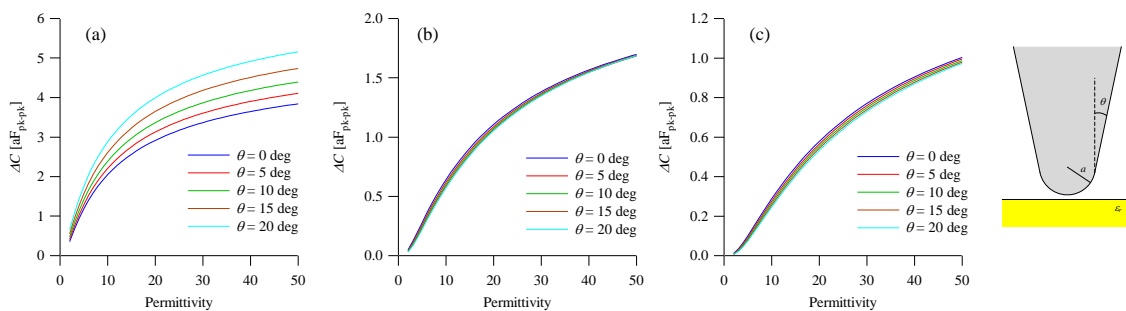


図6 $\partial C/\partial z$ -SNDM 信号強度に関する数値シミュレーション

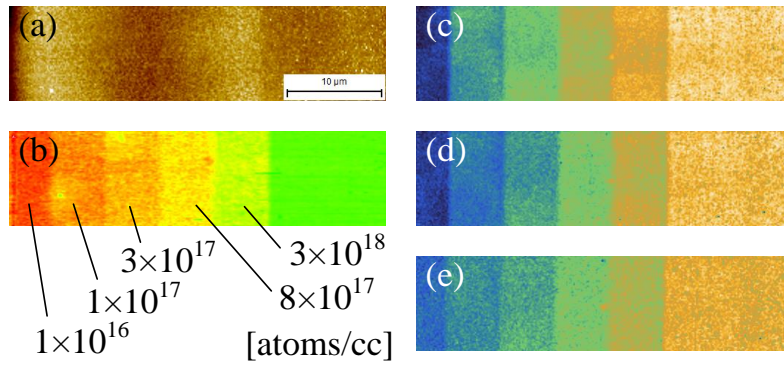


図 7 dC/dV -SNDM および dC/dz -SNDM による n-Si 階段状サンプル測定
 (a) 表面形状像 (b) dC/dV 像 (c) dC/dz 1ω 像 (d) dC/dz 2ω 像 (e) dC/dz 3ω 像

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 3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 Hiranaga Yoshiomi, Cho Yasuo | 4. 巻 68 |
| 2. 論文標題 Material Design Strategy for Enhancement of Readback Signal Intensity in Ferroelectric Probe Data Storage | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control | 6. 最初と最後の頁 859 ~ 864 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/TUFFC.2020.3006909 | 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 Hiranaga Yoshiomi, Mimura Takanori, Shimizu Takao, Funakubo Hiroshi, Cho Yasuo | 4. 巻 60 |
| 2. 論文標題 High-precision local C-V mapping for ferroelectrics using principal component analysis | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 SFFB09 ~ SFFB09 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac13d9 | 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 Fukuzawa Kenji, Hiranaga Yoshiomi, Cho Yasuo | 4. 巻 11 |
| 2. 論文標題 Simulation of nanoscale domain growth for ferroelectric recording | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 AIP Advances | 6. 最初と最後の頁 115117 ~ 115117 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0074004 | 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 Yasuoka Shinnosuke, Shimizu Takao, Tateyama Akinori, Uehara Masato, Yamada Hiroshi, Akiyama Morito, Hiranaga Yoshiomi, Cho Yasuo, Funakubo Hiroshi | 4. 巻 128 |
| 2. 論文標題 Effects of deposition conditions on the ferroelectric properties of (Al _{1-x} Sc _x)N thin films | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 114103 ~ 114103 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0015281 | 査読の有無 無 |
| 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 Hiranaga Yoshiomi, Mimura Takanori, Shimizu Takao, Funakubo Hiroshi, Cho Yasuo | 4. 巻 128 |
| 2. 論文標題 Local C-V mapping for ferroelectrics using scanning nonlinear dielectric microscopy | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 244105 ~ 244105 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0029630 | 査読の有無 無 |
| 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12件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 9件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga, Takanori Mimura, Takao Shimizu, Hiroshi Funakubo, Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Local C-V Characterization for Ferroelectric Films |
| 3. 学会等名 IEEE ISAF-ISIF-PFM 2021 Virtual Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Shinnosuke Yasuoka, Takao Shimizu, Masato Uehara, Hiroshi Yamada, Morito Akiyama, Yoshiomi Hiranaga, Yasuo Cho, Hiroshi Funakubo |
| 2. 発表標題 Downscaling and Low Temperature Deposition of Ferroelectric (Al _{1-x} Sc _x)N Thin Films Deposited by Dual Sputtering |
| 3. 学会等名 IEEE ISAF-ISIF-PFM 2021 Virtual Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Nanoscale Domain Dynamics Characterization Using Local C-V Mapping |
| 3. 学会等名 The Sixth International Symposium on Dielectric Materials and Applications (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Recording Medium Design Aiming at Realizing Ferroelectric Probe Data Storage |
| 3. 学会等名 The Sixth International Symposium on Dielectric Materials and Applications (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 平永 良臣, 長 康雄 |
| 2. 発表標題 高調波 C/ z-SNDM信号を用いた半導体キャリア分布観察 |
| 3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 平永 良臣, 長 康雄 |
| 2. 発表標題 C/ z-SNDM法による半導体ドーパント濃度測定に関する数値シミュレーション |
| 3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 平永 良臣, 長 康雄 |
| 2. 発表標題 C/ z-SNDMによる半導体評価に関する数値シミュレーション |
| 3. 学会等名 ナノテストシンポジウム |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Nanoscale Permittivity Imaging Using C/ z-mode Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy |
| 3. 学会等名 ACSIN-14 & ICSPM26 (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Local Permittivity Measurement Using C/ z-Mode Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy |
| 3. 学会等名 European Conference on Applications of Polar Dielectrics (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Local Permittivity Measurement Using C/ z-Mode Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy |
| 3. 学会等名 2018 ISAF-FMA-AMF-AMEC-PFM Joint Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Nanoscale Linear Permittivity Measurement Using Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy |
| 3. 学会等名 Third International Symposium on Dielectric Materials and Applications (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Yoshiomi Hiranaga and Yasuo Cho |
| 2. 発表標題 Nanoscale Linear Dielectric Constant Imaging Using C/ z-Mode Scanning Nonlinear Dielectric Microscopy |
| 3. 学会等名 Material Research Soceety (国際学会) |
| 4. 発表年 2018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 |
|---------------------------|-----------------------|----|
| | | |

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 |
|---------|---------|
| | |