

# 測長原子間力顕微鏡を用いたサブナノメートル 表面粗さ校正技術の開発

産業技術総合研究所 三隅伊知子

Surface Roughness Measurement in Sub-Nanometer Order Using Metrological Atomic  
Force Microscope

Ichiko Misumi

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

筆者は、測長 AFM を用いてプロファイル表面粗さ校正のサービスを提供している。校正手法は ISO 19606:2017 (JIS R 1683:2014) を参考にしている。しかしながら、ISO 19606 が適用できる範囲は算術平均粗さ  $Ra$  が 1 nm から 30 nm と限定されている。1 nm 以下の表面粗さは主に半導体製造業界から需要があり、適用範囲の拡張が求められている。本研究で測長 AFM を用いて粗さ測定及び不確かさを評価した結果、校正範囲を  $Ra$  が約 0.2 nm まで拡張できることを確認した。測定結果と今後の課題について報告する。

The calibration service of profile surface roughness by using a metrological atomic force microscope is now available at AIST. The calibration method is designed by referring to ISO 19606:2017 (JIS R 1683:2014). The scope of the ISO 19606:2017, however, is limited to roughness measurements of surfaces with an arithmetical mean roughness,  $Ra$ , in the range of about 1 nm to 30 nm. Currently there is strong demand for the measurement of surface roughness of sub-nanometer order in the semiconductor industry. In order to meet such demand, it is necessary to extend the range of surface roughness measurements in the calibration service. In this study, author performed surface roughness measurements using a metrological AFM and evaluated their uncertainties. As a result of a series of measurements and evaluation of their uncertainties, it has been found that the calibration range can be extended to surfaces with an arithmetical mean roughness,  $Ra$ , in the minimum range of about 0.2 nm. The measurement results and the future challenges are reported in this paper.

## 1. はじめに

薄膜作製や材料表面処理条件の最適化を行うため、様々な手法で表面粗さ測定が行われており、従来の手法に加えて原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope, AFM) による粗さ測定の結果が報告される事例も増えてきた。AFM による粗さ測定で、より信頼性の高い測定結果を得るために、従来の触針式粗さ計と同様、規格に基づいた測定の重要性が高まってきている。

現在利用可能な AFM による粗さ測定に関する規格として、「ISO 19606:2017 Fine ceramics (advanced ceramics, advanced technical ceramics) – Test method for surface

roughness of fine ceramic films by atomic force microscopy (JIS R 1683: 2014)」<sup>1,2)</sup> が挙げられる。この規格の適用範囲は「基板上に形成されたファインセラミックス薄膜の表面性状のうち、算術平均粗さ  $Ra$  の範囲が 1~30nm、かつ、粗さ曲線要素の平均長さ  $RSm$  の範囲が 0.04~2.5 $\mu$ m の表面粗さを、原子間力顕微鏡によって測定する方法に規定する。」と記載されている。

様々な校正に用いている測長 AFM<sup>3-8)</sup>を用いて、JIS R 1683: 2007 に基づいた表面粗さ測定を行い、不確かさ評価に本規格が有用であることを示した<sup>4)</sup>。また、セラミックス製のブロックゲージなど、薄膜以外でも利用できることを確認した<sup>4)</sup>。上記で述べたように、ISO 19606: 2017 (JIS R 1683: 2014)が適用できる範囲は  $Ra$  が 1 nm から 30nm、 $RSm$  が 0.04 $\mu$ m から 2.5 $\mu$ m と限定されている。適用範囲が限定されている理由は、ISO 19606: 2017 には記述されていないが、JIS R 1683: 2014 の解説で説明されている。 $Ra$  が 1nm 以下では針の精度の保証が難しいこと、 $Ra$  が 30nm 以上の粗さを AFM で測ることは実用的ではない(通常、 $Ra$  が 30 nm 以上であれば光学式か触針式の装置が用いられる)、という理由で、適用範囲が  $Ra$  が 1 nm から 30 nm の範囲に限定されている。しかしながら、これらの理由は不明確である。 $Ra$  の測定範囲を拡張できる可能性がある。また、 $RSm$  の範囲として最大 2.5 $\mu$ m 程度とした理由は、正確な測定のためには、評価長さが  $RSm$  の 20 周期以上であることが望ましく、一方、通常の AFM 装置のスキヤナでひずみが問題にならない最大の長さが 50 $\mu$ m 程度であるため、と記載されている。 $RSm$  が最小 40nm とした理由は、(ISO 19606: 2017 (JIS R 1683: 2014)の図 B.1 に示されるように)市販の探針が試料表面の谷底に届く最小の  $RSm$  が 40nm であるため、と記載されている。しかしながら、 $Ra$  が 1nm 以下、例えば約 0.2nm の表面粗さは半導体製造業界から需要があり、適用範囲の拡大が望まれる。本研究では、 $Ra$  の測定および不確かさ評価を行った。 $Ra$  測定の不確かさ評価を行った結果、 $RSm$  の適用範囲がそのままであれば、現時点で本規格が  $Ra$  が最小約 0.2nm まで適用可能であることを確認した<sup>9)</sup>。さらに、 $Sa$  のテスト測定も行った。結果と今後の課題について報告する。

## 2. 測定手順

### 2.1 測定試料

Table 1 に試料の仕様を示す。AFM 測定による  $Ra$  が 1nm 以下が予想される試料である。適切な標準試料がないため、市販のシリコンウエハ(110 面、片面研磨)を 15mm 角に切断し、研磨面を測定対象とした。

### 2.2 ISO 19606: 2017の概要

ISO 19606: 2017 (JIS R 1683:2014)の手順の概要を説明する。詳細は別に譲る<sup>1,2,4)</sup>。測定は(1)装置の校正、(2)  $Ra$  および  $RSm$  の概算値の測定、(3)探針直径の評価と粗さ測定における誤差の評価、(4)試料の粗さ測定、の順で行う。(1)装置の校正は通常、校正済のピッチ及び段差標準試料を基準とする。(2)予備粗さ測定は  $Ra$  および  $RSm$  の概算値を得るために行われる。概算値はプローブ探針検定で用いられる。 $Ra$  および  $RSm$  の概算値の測定の走査領域は 2 $\mu$ m 及び 10 $\mu$ m で、画素数は 256 か 512 である。評価長さに  $RSm$  が 20~50 周期含まれるよう、試料測定の評価長さを決定する。(3)探針の検定に剣山試料を用いる。剣山試料の仕様は以下のとおりである。剣山の曲率半径は 10 nm、剣山の角度は

20°もしくは50°、剣山高さは300 nmから600 nmの間、隣接する剣山の間隔は約2.12 $\mu$ m、基板サイズは5 mm角である。ここで、走査範囲は1.28 $\mu$ m角、画素数512 x 512と規格で指定されている。山頂からZ方向に10 nm下がったところをXY面で輪切りにした断面図データを取得し、断面直径Dを算出する。最大断面直径 $D_{\max}$ は下記のようにあらわされる。

$$D_{\max} = 2\sqrt{\frac{20RSm^2}{2\pi^3 Ra} - 100} \quad (1)$$

ここでRaは定数でその値は(2)で得られたRa概算値、RSmは規格適用範囲内の変数である。ISO 19606:2017の付属書Bより、Dが $D_{\max}/2$ より小さい場合は誤差5%程度以内、Dが $D_{\max}/2$ と $D_{\max}$ の間であれば、誤差20%程度以内の粗さ測定が期待できる。(4)検定済みの探針で粗さ測定を行う。測定部位は試料中心付近の10 mm角領域の四隅及び中央の合計5か所である。測定条件は、画素数(256~512) x (10~512)の範囲である。

Ra, RSm及びDはSPIP (Image Metrology A/S)の粗さ解析モジュールと粒子解析モジュールを組み合わせて計算した<sup>10)</sup>。市販のAFMの中には探針検定も含めてJIS R 1683に準拠したソフトウェアを搭載しているものもある<sup>11)</sup>。

### 3. 測長AFMによる粗さ測定

Fig.1に測長AFMによる粗さ測定手順を示す。図中の数字は、キャプション番号と同じである。

#### 3.1 試料の予備測定

測長AFMにはXYZ軸にレーザ干渉計が搭載されておりSIトレーサブルな装置であるため、(1)装置の校正が不要である。最初に(2) RaとRSmの予備測定を行う。規格によると双方の概算値とも走査線1本から算出、とされている。筋状の表面で、筋と直角に走査できれば1本の走査線からRaとRSmの概算値を求めるのは問題ない。が、今回の測定試料のような等方性に近い面の場合、走査線1本ではRSmの概算値を適切に算出できない場合がある。そこで、予備測定では走査線数を1本ではなく8本に設定し、それぞれ算出したRSm概算値のうち最小のもの、Ra概算値のうち最大のものを採用することとした。これは、針の太さが一定とすると、RSmが短くなるほど、またRaが大きくなるほど、探針検定の基準が厳しくなるためである。少し厳しめの基準でも5%もしくは20%基準で合格した探針を用いることができると、AFMによる粗さ測定を進める上で探針の品質を疑わなくてよいという利点がある。 $\lambda_c$ フィルタは評価領域の1/5に設定した。Table 2にRaおよびRSmの概算値を示す。Ra概算値は0.20nm、RSm概算値は41nmであった。評価長さに含まれるRSmの数が20から50の間になるよう、AFM粗さ測定の評価長さを決定した。評価長さは1 $\mu$ mである。また評価長さに含まれるRSm概算値の数は24である。Fig.2にRSmの概算値を求めるのに用いた評価プロファイルである。一連の測定は室温20 $^{\circ}$ C、相対湿度50%、清浄度Class 7に保たれた校正室で行われた。温度センサおよび湿度センサもそれぞれSIトレーサブルである。

#### 3.2 探針の検定

次に(3)探針の検定を行う。詳細は参考文献4)の3.1章に譲る。探針の検定方法は、従

来の触針式粗さ計の手法にならっている。探針の検定に用いた試料は TGT1 (NT-MDT Spectrum Instruments Group 社) で、曲率半径が 10 nm 以下、剣山の角度が 50°、隣接する剣山の間隔は約 2.12  $\mu\text{m}$  である<sup>12)</sup>。ここで、走査範囲は剣山の中心が測定領域の中心にくるよう調整することが求められている。走査範囲は 1.28  $\mu\text{m}$  角、画素数 512 x 512 と規格で指定されている。しかしながら、筆者らの測長 AFM は AFM 測定開始時に走査領域中央で一度探針を降ろす仕組みになっており、指定通り剣山山頂を走査領域中央に設定すると位置決め時に探針が破損する。よって中心から 320 nm 程度横にずらし、走査範囲を 1280 nm x 640 nm、画素数 512 x 256 とした。剣山の頂点から Z 方向に 10 nm 下がったところを XY 面で輪切りにした断面の面積より直径  $D$  を求める。標準シリコンカンチレバーと CNT (カーボンナノチューブ) 探針付カンチレバーと双方検証したが、 $D$  はほぼ同じであったため、標準シリコンカンチレバー (オリンパス社製、OMCL-AC160TS、ばね定数：約 42 N m<sup>-1</sup>、共振周波数：約 300 kHz) を測定に用いた。ここで、規格で推奨するカンチレバーは、共振周波数が 100 kHz 以上のものであり、推奨された水準を満たしている。走査方向は Y 軸である。粗さ測定に用いたカンチレバープローブ探針の  $D$  は 39.7 nm であった。

Fig.3 に探針の検定の結果を示す。式(1)と Table 2 の  $Ra$  概算値から、 $RSm$  を 40 nm から 2500 nm まで変化する変数として、 $D_{\text{max}}$  つまり 20% 基準を実線で、 $D_{\text{max}}/2$  つまり 5% 基準を破線で示した。(2)の予備測定で求めた  $RSm$  概算値と(3)探針の検定で求めた  $D$  より求められた測定点を図の黒点で示す。黒点が破線より下にあるため、5% 基準で合格であった。

### 3.3 粗さ測定

次に(4)粗さ測定を行う。試料サイズが十分に大きいので、ISO 19606: 2017 の 11 章 b) に示されるように測定点を 5 か所設定できた。中央、左上、左下、右下、右上をそれぞれ測定点 1, 2, 3, 4, 5 とした。各測定点で 2 回ずつ繰り返し測定を行う。Fig.4 に測定曲面の例を示す。画素数は 512 x 16 である。走査線数を 16 に抑えたのは、測定時間を短くし探針の摩耗を避けるためである。走査線数を抑えても粗さの測定を行えるのが ISO 19606: 2017 の長所である。走査速度は約 100 nm  $\cdot$  s<sup>-1</sup> である。Fig.5 に各測定点で繰り返し測定 1 回目、2 回目でそれぞれ得られた  $Ra$  および最大高さ  $Rz$  の平均値を示す。ここで、最大高さ  $Rz$  を示す理由は、ISO の 12 Test report の章で、 $Rz$  は必ず報告しなければならない項目の一つに定められているためである。試料の不均一性と測定の繰り返し性の差がほとんど見られなかった。詳細は 3.4 粗さ測定の不確かさに譲るが、 $Ra$  が 0.2 nm を切り、装置の精度の限界に近いと考えられる。測定箇所 2 において  $Rz$  が大きくなっている原因は、ラインプロファイルを観察すると数 nm レベルの異物が試料基板上に付着していたためであった。 $Ra$  および  $Rz$  はそれぞれ 0.17 nm, 3.46 nm であった。

### 3.4 粗さ測定の不確かさ

$Ra$  測定の不確かさ評価<sup>13)</sup>を行った。評価方法は参考文献 4) の 3.2 章と同様である。試料の不均一性および測定の繰り返し性に由来する不確かさの評価に分散分析を適用した<sup>7)</sup>。Table 3 に主な不確かさ要因と合成標準不確かさへの寄与、測定結果  $Ra$  と拡張不確かさ  $U_{95}$  を示す。干渉測長の非線形性など校正装置に由来する不確かさが大きくなりその値

は 0.07 nm であった。 $Ra$  が 0.2 nm の試料をより小さな不確かさで測定するためには、より非線形性の少ない干渉計を搭載した測長 AFM の開発、より測定のリピート性を小さくする安定した装置の開発が必要となってくる。

### 3.5 $Sa$ , $Sz$ のテスト測定

JIS R 1683: 2014 の 9 章では、測定結果のデータの例として  $Ra$  と  $Rz$  のみが挙げられている。一方、ISO 19606: 2017 の 12 章では、ユーザが  $Ra$  と  $Rz$  の組み合わせ、もしくは  $Sa$  (arithmetical mean height of the scale limited surface) と  $Sz$  (maximum height of the scale-limited surface) の組み合わせをレポートの測定結果として選択できる。この相違の理由は不明だが、 $Sa$  および  $Sz$  への需要の高まりが考えられる。測定の最後に画素数 512 x 512 で測定を行い  $Sa$  と  $Sz$  のテスト算出を行った。測定した個所は測定点 5 である。Fig.6 に試料の AFM 像を示す。走査範囲は  $1\mu\text{m}$  (Y) x  $1\mu\text{m}$  (X) である。Fig.6 で示されたように、試料の中央付近にナノメートルオーダの異物が付着していることが判明した。これは 16 本の走査線では見つからなかったサイズの異物であった。 $Sa$  は 0.11 nm,  $Sz$  は 4.34 nm であった。測定点 5 の  $Sa$  を  $Ra$  と比べたときに、 $Sa$  は  $Ra$  の不確かさの範囲内で一致していた。ただし  $Ra$  が約 0.17 nm であったのに対して  $Sa$  は 0.11 nm であり、約 0.06 nm の差がある。これは、不確かさの範囲内であるものの、 $Sa$  測定中に探針摩耗が起きていた可能性が原因として考えられる。標準シリコンレバーと CNT 探針付カンチレバーの直径  $D$  はほぼ同じであるが、CNT 探針付カンチレバーを用いることによって、 $Sa$  測定における探針摩耗を低減できる可能性がある。

ISO 19606: 2017 に基づいて  $Sa$  測定とその不確かさ評価を行うには、 $Ra$  同様、少なくとも 5 か所で 2 回ずつ測定する必要がある。本研究の例では  $Sa$  の測定時間は  $Ra$  の 32 倍かかる。また、低摩耗の針は標準シリコンカンチレバーと比較して約 10 倍価格が異なる。そこで、日常の製品の品質管理は  $Ra$  測定で行い、他の光学的な手法と比較したい特別な場合のみ  $Sa$  測定を行うなど、適宜使い分けを行うことが考えられる。ISO 25178-3: 2012 の 4.5 によると、一般的に  $Sa$  測定では基準領域と評価領域は同じでよい、とのことである<sup>15)</sup>。つまり、 $RSm$  から評価長さ(領域)を算出するという概念がない、ということである。しかしながら、評価領域を自由に決めてよいということのも逆に難しい場合がある。そこで、AFM による  $Sa$  測定の条件を決定するのに、ISO 19606: 2017 の手法にあるように、予備測定で  $RSm$  を求め、その大きさに応じて評価長さ(領域)を決める、という方法も考えられる。

## 4. 考察

測長 AFM でサブナノ粗さの校正をより小さな不確かさで行うには解決すべき課題がいくつかある。一つは走査の安定性である。従来の測長 AFM は様々な種類の校正器物に対応するため、走査範囲  $100\mu\text{m}$  (X) x  $100\mu\text{m}$  (Y) x  $12\mu\text{m}$  (Z) を有している<sup>3)</sup>。半面、スキヤナ上の移動鏡の重さとバランスを取る構造ではないため、サブナノ粗さ測定を実現するためには、より安定した構造にする必要がある。もう一つはドリフトである。現在、表面粗さ測定 ( $Ra$ ) では走査線数を 16 本に絞って測定時間を短くし、ドリフトの影響を小さくしている。ドリフトが小さくなれば、走査条件の制約が緩和できる。現在、サブナノ粗さ校正のための測長 AFM の開発を行っている<sup>14)</sup>。カウンタマス を Z スキヤナの下部に設置

し、より安定な走査を可能とする。また、Z軸のレーザ干渉計の参照鏡がAFMカンチレバープローブユニットに設置され、ドリフト低減を目指している。

## 5. 結論

測長AFMを用いたプロファイル表面粗さ測定と不確かさ評価を行った。検証の結果、算術平均粗さ  $Ra$  の適用範囲が、最小約 0.2 nm まで拡張可能であることを確認した。粗さ測定の不確かさ評価を行ったところ、拡張した粗さでは探針や校正装置の限界に近いことが分かった。また、輪郭曲面の算術平均粗さ  $Sa$  のテスト測定も行った。測定結果の妥当性を評価するため、他国の国家計量標準機関との比較測定が必要である。今後、よりサブナノ粗さ測定における不確かさ低減を目指して校正装置を開発する予定である。

## 6. 謝辞

本研究は、平成 28 年度日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。同助成会に心より感謝いたします。

## 7. 参考文献

- 1) ISO 19606:2017 Fine ceramics (advanced ceramics, advanced technical ceramics) - Test method for surface roughness of fine ceramic films by atomic force microscopy
- 2) JIS R 1683: 2014 Test method for surface roughness of fine ceramic films by atomic force microscopy (in Japanese)
- 3) I. Misumi, S.Gonda, Q.Huang, T.Keem, T.Kurosawa, A.Fujii, N.Hisata, T.Yamagishi, H.Fujimoto, and K.Enjoji, Meas. Sci. Technol, 16, 2080 (2005).
- 4) I. Misumi, K.Naoi, K.Sugawara, and S.Gonda, Measurement, 73, 295 (2015).
- 5) S.Gonda, T. Doi, T.Kurosawa, Y.Tanimura, N.Hisata, T.Yamagishi, H.Fujimoto, and H.Yukawa, Review of Scientific Instruments, 70, 3362 (1999).
- 6) R.Kizu, I. Misumi, A.Hirai, K.Kinoshita, and S.Gonda. Meas. Sci. Technol., 29, 075005 (2018).
- 7) I. Misumi, M.Lu, H.Tanaka, K.Sugawara, S.Gonda, and T.Kurosawa, Meas. Sci. Technol., 19, 045101 (2008)
- 8) I. Misumi, K.Sugawara, K.Takahata, K.Takahashi, and K.Ehara, Precision Engineering, 51, 691, (2018).
- 9) I. Misumi, K.Sugawara, R.Kizu, A.Hirai, and S.Gonda, Precision Engineering, to be published.
- 10) SPIP (Scanning Probe Image Processor) , Image Metrology, <https://www.imagemet.com/>
- 11) Hitachi high-technologies, <https://www.hitachi-hightech.com/global/>
- 12) NT-MDT Spectrum Instruments Group, <https://www.ntmdt-si.com/>
- 13) ISO/IEC Guide 98-3, Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM) , 2008.
- 14) I. Misumi, R.Kizu, A.Hirai, and S.Gonda, Proceedings of ICPE 2018 , D-1-2 , 17th International Conference on Precision Engineering. Nov.12 (Mon.) -16 (Fri.) , 2018

Kamakura, Japan, Organized by The Japan Society for Precision Engineering.

15) ISO 25178-3: 2012 Geometrical product specifications (GPS) – Surface texture: Areal – Part 3: Specification operato

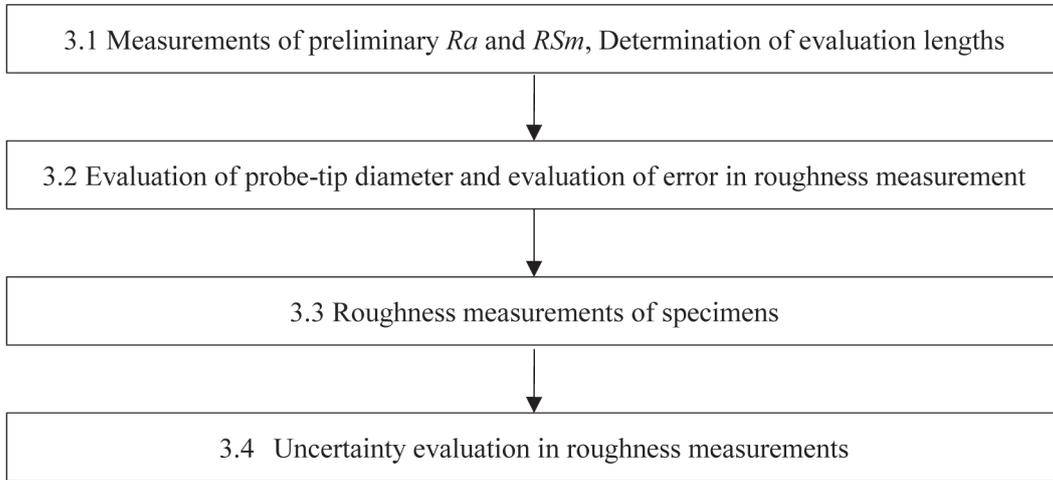


Fig. 1 Procedure of roughness measurements using a metrological AFM.

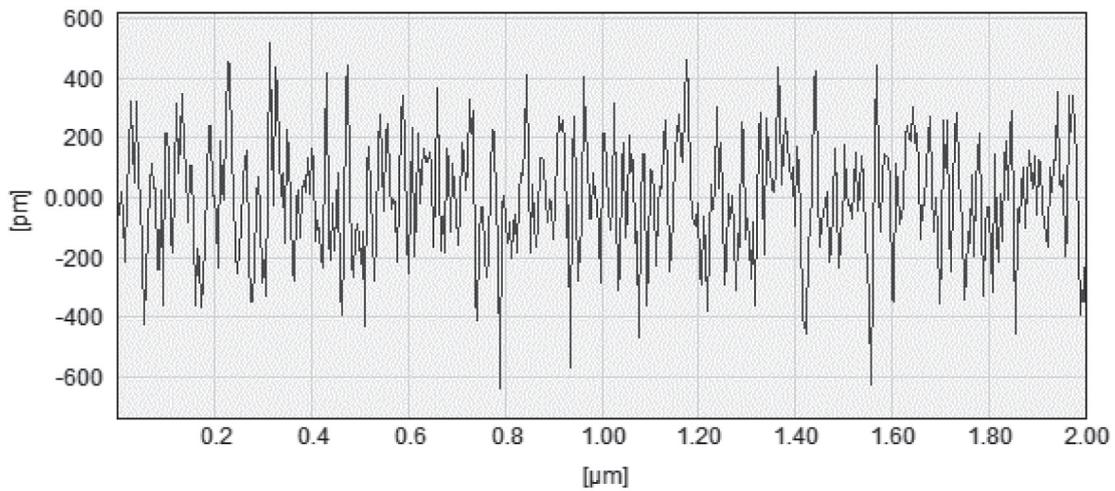


Fig. 2 Evaluation profiles used in preliminary  $RSm$  calculations. Preliminary  $RSm$  is 41 nm.

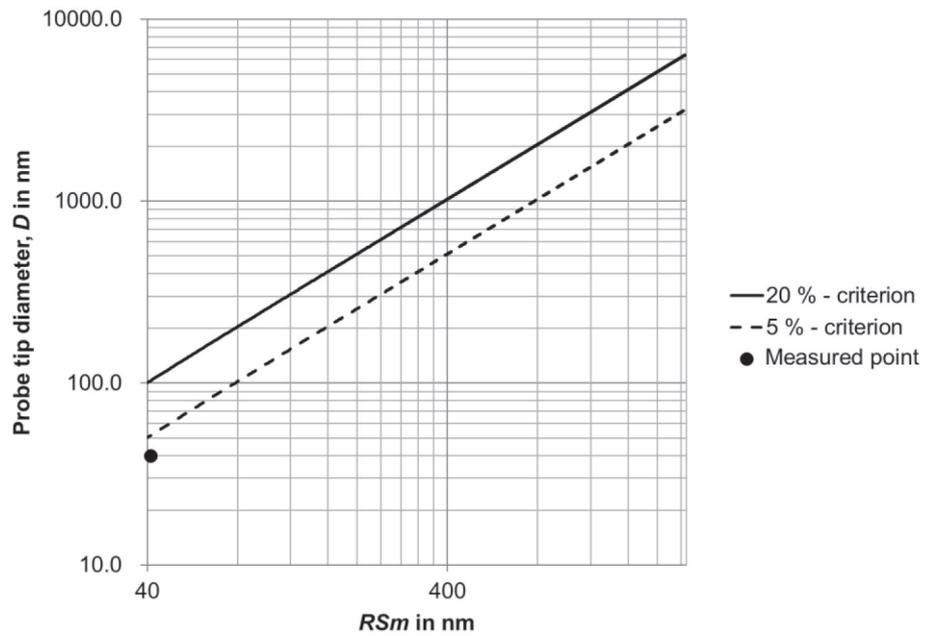


Fig.3  $D - RSm$  maps for probe-tip error evaluation to measure roughness of specimens with preliminary  $Ra$  of 0.20 nm. The point obtained from the measured value of probe-tip diameter  $D$  and preliminary  $RSm$ . The measured point is located below the dotted lines (5 % criterion), enabling roughness measurements with an error of < 5 %.

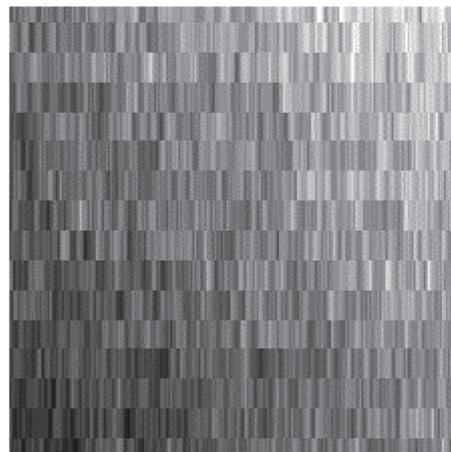


Fig.4 Examples of surface profiles of the specimen (Scanning area:  $1\mu\text{m}$  (Y) x  $1\mu\text{m}$  (X), Number of picture elements: 512 (Y) x 16 (X)).

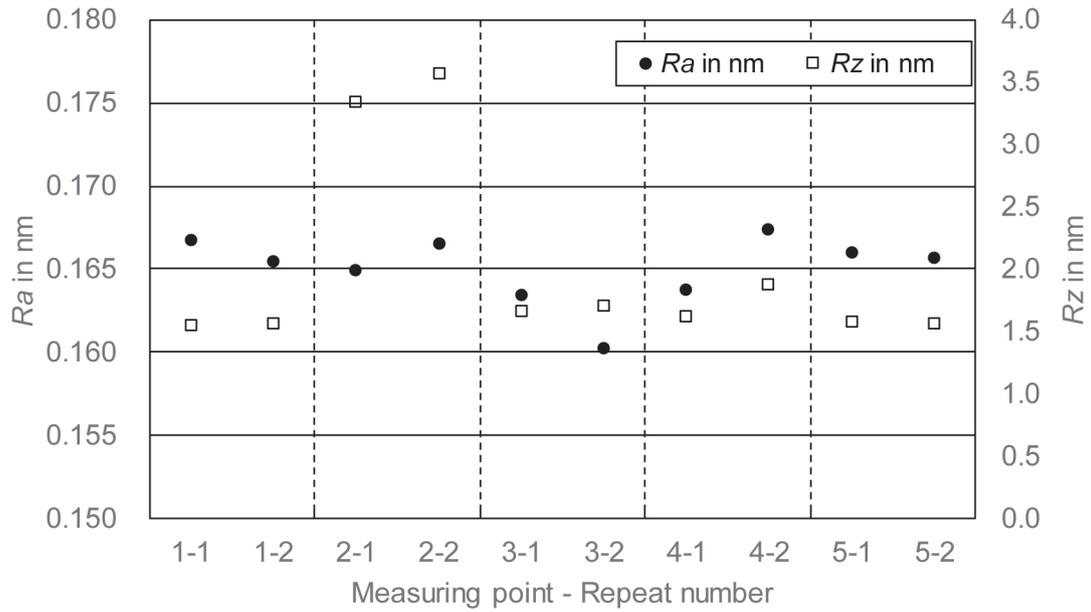


Fig.5 Repetitive measurement results of  $Ra$  and  $Rz$  at the five measuring points of the specimen .

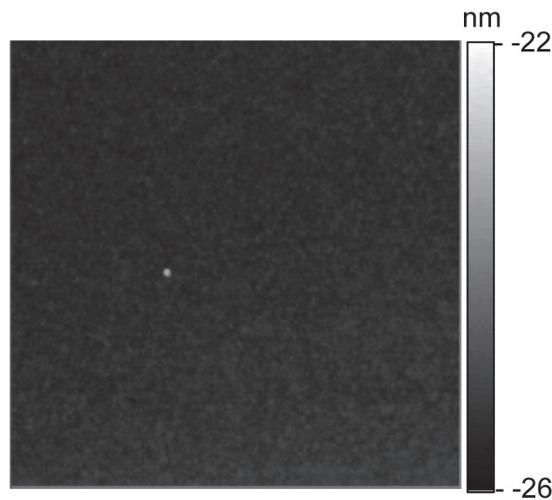


Fig.6 Surface profiles of the specimen (Scanning area:  $1 \mu\text{m}$  (Y) x  $1 \mu\text{m}$  (X) , Number of picture elements: 512 (Y) x 512 (X)). The trial measurement results of  $Sa$  and  $Sz$  are 0.11 nm and 4.34 nm, respectively.

Table 1. Specification of the specimens

Specimen	Manufacturer	Product number	Substrate material	Remarks
Silicon wafer	Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.	CZ-P <100>	Silicon	Size: 15 mm x 15 mm, Cut from 6-inch wafer with its one surface polished

Table 2. Preliminary  $Ra$  and  $RSm$  and evaluation length determined from preliminary  $RSm$

Scanning range for measurements of preliminary $Ra$ and $RSm$	Preliminary $Ra$	Preliminary $RSm$	Evaluation length	Number of profile elements in the evaluation length
2 $\mu\text{m}$	0.20 nm	41 nm	1 $\mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$	24

Table 3. Major sources of uncertainty, their contributions to the combined standard uncertainty and expanded uncertainty

Interferometer nonlinearity	0.07 (nm)
Probe-tip error evaluation	0.005 (nm)
Non-uniformity of surface roughness of a specimen	Negligible
Interferometer resolution	0.02 (nm)
Repeatability of measurement	Negligible
Expanded uncertainty, $U_{95}$ (nm)	0.14 (nm)