

HOLZ 線図形をもちいた SiGe/Si 界面近傍の 格子湾曲および伸張歪みの解析

齋 藤 晃*

1. は じ め に

結晶材料の格子歪みは、電気伝導、磁性、光学的性質などさまざまな物性に大きな影響をもたらす。特に半導体の分野では、シリコンにおける1軸性圧縮歪みによるキャリア移動度の向上の発見以来、ヘテロ界面の格子ミスフィットを利用した歪みデバイスに関する研究が盛んになされており、いかに歪みを導入するか、導入した歪み分布をいかに計測するか、が極めて重要な研究課題となっている。最新のMOSFETデバイスでは、そのゲート長が50 nmを下回っており、ナノメートルオーダーの分解能を有する格子歪みの計測手法が必要不可欠な状況にある。収束電子回折(Convergent-beam electron diffraction; CBED)法は、そのニーズに応える手法のひとつである。

CBED法をもちいた格子歪み解析では、透過ディスクに現れる高次ラウエ帯(Higher-order Laue zone; HOLZ)反射による回折線(HOLZ線)をもちいる。図1(a)は、結晶Siの[320]入射で得たHOLZ線図形である。CBED法では収束角10 mrad程度に絞った電子ビームを試料に入射する。収束ビームは入射方向の異なる平面波の重ね合わせと考えることができる。収束ビーム中に含まれる入射方向のうち、Bragg条件を満たすものは回折ディスクの方向に散乱されるため、透過波の強度が減少する。ある格子面に対してBragg条件を満たす入射方向は、その面に対してBragg角 θ をなす円錐面、すなわちコッセルコーンに沿って分布する。加速電圧100 kV以上の高速電子の電子回折の場合Bragg角は100 mrad以下であり、コッセルコーンはかなり平たい円錐面となる。このため、収束ビーム中の平面波のうち、コッセルコーンに沿ったものはほぼ直線上に分布し、透過ディスク

にはほぼ直線状の暗線が現れる。電子回折の場合、X線に比べてEwald球が大きいとHOLZ反射の逆格子ベクトルはZOLZ反射に比べて数倍長く、したがって格子定数の変化にともなって敏感に変位する⁽¹⁾。

CBED法をもちいた格子定数の決定は、実験図形および計算図形にみられるHOLZ線の配列をフィッティングすることで行う⁽²⁾⁻⁽⁸⁾。もし電子線の照射領域内で格子歪みが一様である場合、HOLZ線は各格子面につき一本だけ現れる。しかしながら、照射領域内で格子歪みが一様でない場合、HOLZ線がブロードになったり、複数の線に分裂したりする。これまでの格子定数決定法は、分裂のないHOLZ線を仮定したものであり、分裂HOLZ線を含む図形には適用できない。HOLZ線の分裂現象は、半導体デバイス試料の界

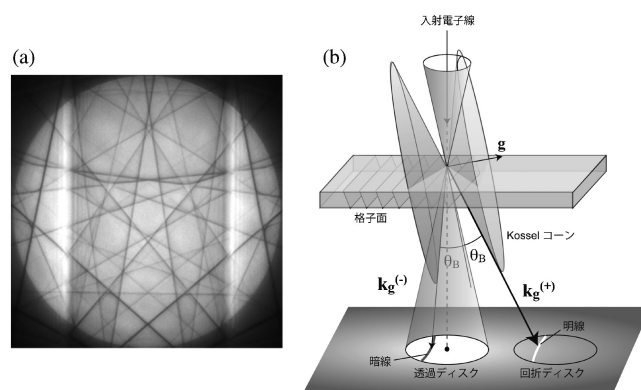


図1 (a) Si[320]入射で得たHOLZ線図形。透過ディスクの中にみられる暗線がHOLZ反射である。(b) HOLZ線図形の生成を表す模式図。収束電子線のうち格子面に対してBragg条件を満たすものが散乱され回折ディスク内に明線を、透過ディスク内には暗線を形成する。

* 名古屋大学准教授；エコトピア科学研究所(〒464-8603 名古屋市千種区不老町)
Characterization of Bending and Expansion of a Lattice of a Si Substrate Near a SiGe/Si Interface by Using Split HOLZ Line Patterns; Koh Saitoh (EcoTopia Science Institute, Nagoya University, Nagoya)
Keywords: convergent-beam electron diffraction, higher-order Laue-zone reflection line, lattice strain, lattice bending, lattice expansion
2012年3月19日受理

面近傍等で頻繁に観察されており、デバイス特性に最も影響を与えると考えられる界面近傍の歪みが、従来の方法では計測できない状況であった。

分裂した HOLZ 線のロッキングカーブ、すなわち HOLZ 線を横切る強度プロファイルを利用して格子歪みを決定しようとする試みがいくつか報告されている⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾。Vincent らは、電子線の進行方向 z に対して対称な格子変位場に対して運動学近似で HOLZ 線のロッキングカーブを計算した。その結果、ロッキングカーブが 2 つの対称なピークを示し、そのピーク間距離は近似的に $4\mathbf{g} \cdot \Delta \mathbf{x} / t$ で与えられることを示した。ここで、 $\mathbf{g}$, $\Delta \mathbf{x}$ および t はそれぞれ、逆格子ベクトル、歪み場の最大変位ベクトルおよび試料厚さである。湾曲した試料が示す分裂 HOLZ 線のロッキングカーブについて、動力学回折効果を取り入れた計算もなされており⁽¹²⁾⁻⁽¹⁶⁾、定量解析による非一様歪み場決定の研究がなされている。また低次反射のロッキングカーブをもちいた歪み解析もなされている⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾。

しかしながら、上記の方法はある特定の HOLZ 反射のロッキングカーブをもちいるものであり、複数の HOLZ 線からなる図形全体の幾何学をもちいるものではない。非一様歪みは、通常、伸張・圧縮歪みをともなうため、それらを同時に決定する必要がある。本稿では、最近われわれが開発した複数の分裂 HOLZ 線を含む図形から格子定数および格子湾曲歪みパラメータを同時に決定する手法を解説し、その計算アルゴリズムを実装した GUI を備えたプログラムおよび本手法を適用した 2 つの例を紹介する⁽¹⁹⁾。

2. HOLZ 線ロッキングカーブの運動学回折シミュレーション

結晶中の位置 (x, y, z) における格子変位が $\mathbf{R}(x, y, z)$ で与えられる結晶の運動学的ロッキングカーブを考える。ここでは、電子線の進行方向を z 方向とし、試料は xy 面に平行な薄膜状であるとする。収束電子回折でもちいる電子ビームは、試料位置で直径 10 nm 以下に絞られている。格子変位 $\mathbf{R}(x, y, z)$ の位置依存性が急峻でなく、10 nm 程度の範囲では一定と見なすことができるとすると、照射領域内の xy 方向には $\mathbf{R}(x, y, z)$ は一定であると近似できる。すなわち、この結晶格子は、歪みの無い 2 次元格子を z に垂直な方向に変位させながら積層したものと考えることができる。このとき、格子変位は z 座標のみの関数 $\mathbf{R}(z)$ と書くことができる。試料から得られる HOLZ 反射のロッキングカーブは以下の式で与えられる運動学的散乱振幅 $\phi_{\mathbf{g}}(s)$ の絶対値の 2 乗となる⁽¹⁰⁾。

$$\phi_{\mathbf{g}}(s) = \frac{i\pi}{\xi_{\mathbf{g}}} \int_{-\frac{t}{2}}^{\frac{t}{2}} e^{-2\pi i\{sz + \mathbf{g} \cdot \mathbf{R}(z)\}} dz \quad (1)$$

ここで、 $\xi_{\mathbf{g}}$, t および s はそれぞれ消衰距離、試料厚さおよび励起誤差である。また、 z 座標の原点は試料の入射面と出射面の中点である。

図 2 は、 $z=0$ にある xy 面に対して対称な変位場の例を示している。変位ベクトル $\mathbf{R}(z)$ は常に x 方向に平行である。 $\mathbf{R}(z)$ は、 $-t/2 < z < t/2$ に対して $0 < f(z) < 1$ のように規格化されたスカラー関数 $f(z)$ をもちいて $\mathbf{R}f(z)$ と表すことができる。ここで $\mathbf{R}$ は、 $\mathbf{R}(z)$ に平行で、長さが $\mathbf{R}(z)$ の最大値に等しいベクトルである。以下では、 $\mathbf{R}$ を湾曲ベクトルと呼ぶことにする。

ここで変位場を $\mathbf{R}(z)$ として、変位方向が入射方向に垂直な一定方向を向き、 $|z|$ に対して単調増加する対称変位場を考える。この場合、 $|\mathbf{R}(z)|$ の最大値 $R_{\max} = |\mathbf{R}|$ は試料入射面および出射面での変位量となる。

図 3 (a), 3(b) および 3(c) は、V 字モデル ($f(z) \propto |z|$)、放物線モデル ($f(z) \propto z^2$) およびベル型モデル ($f(z) \propto z^2/a^2(a^2 + z^2)$) に対するロッキングカーブの $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ 依存性を示したものである。 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} = 0$ 、すなわち格子湾曲歪みがない場合において単一のピークを示すロッキングカーブが、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ が大き

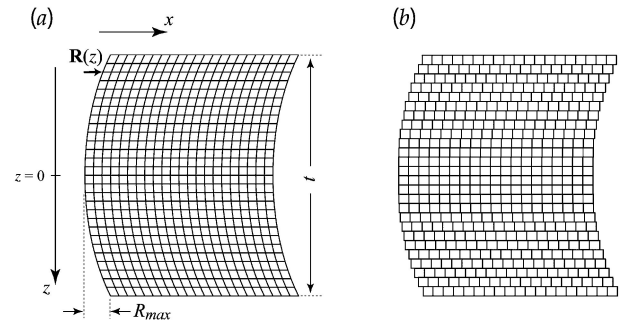


図 2 (a) 湾曲歪みを含む格子の模式図。(b) (a) の湾曲格子は、無歪みの薄い 2 次元格子が x 方向に変位して積層したものと考えられる。

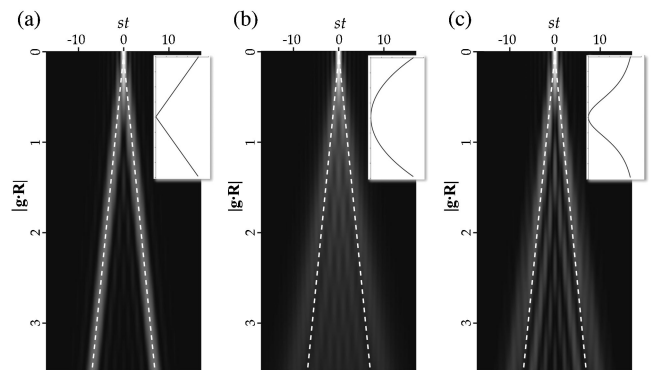


図 3 3 種類の格子湾曲モデルに対するロッキングカーブの $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ 依存性。横軸は励起誤差 s と試料厚さ t の積である。それぞれ、格子湾曲の z 依存性が V 字モデルの場合 (a)、放物線モデルの場合 (b) およびベル型モデル (c) である。例えば、V 字モデルの場合、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} = 2$ を満たす HOLZ 線を横切る強度プロファイルは図 (a) に示す $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} = 2$ の位置の水平線に沿った強度プロファイルで与えられる。どのモデルにおいても、メインピークの分裂がみられ、その分裂幅は $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ にほぼ比例している。

くなるにつれていずれのモデルにおいても、ピークが分裂し、その距離は $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ にもない増大することが分かる。V 字型の場合、ピーク位置を与える励起誤差 s_{peak} は正確に

$$s_{\text{peak}} = \pm 4\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} / t \quad (2)$$

で与えられる。図中の点線はこの式を満たす直線である。 s_{peak} と $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ の同様な線形関係は、放物線モデルおよびベル型モデルでもみられることに注意されたい。入射方向の変化にともなう励起誤差の変化は、その逆格子ベクトルの長さに比例するため、実際に CBED ディスク中にみられる HOLZ 線の分裂幅は、上式を g で割った $8\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} / gt$ となる。ロッキングカーブは、試料厚さ t に依存する副次的振動により変調をうける。

HOLZ 線の分裂幅と $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} / g$ の線形関係は動力学シミュレーションでも確認できる。図 4 (a) および 4(b) は、多波 Howie-Whelan 方程式にもとづいて放物型格子湾曲を含む Si 結晶の HOLZ 線図形を計算したものである。入射方位は $[3\ 2\ 0]$ とし、加速電圧は 120 kV、試料厚さは 400 nm とした。計算にもちいた反射は、ZOLZ 反射 5 つおよび HOLZ 反射 16 個である。湾曲ベクトル $\mathbf{R}$ の方向は、それぞれ $\mathbf{R}_1 = 0.15[0\ 0\ 1]$ および $\mathbf{R}_2 = 0.15/94[3\ \bar{2}\ 9]$ とした。図 4(c) は、図 4(b) と同じ湾曲方向であるが、格子定数を Si のバルク値と異なる $a = 0.550$ nm とした場合である。湾曲ベクトルが $\mathbf{R}_1$ の場合、同じ番号で示された結晶学的に等価な HOLZ 線の分裂幅は等しく、図形全体として鏡映対称を示している。

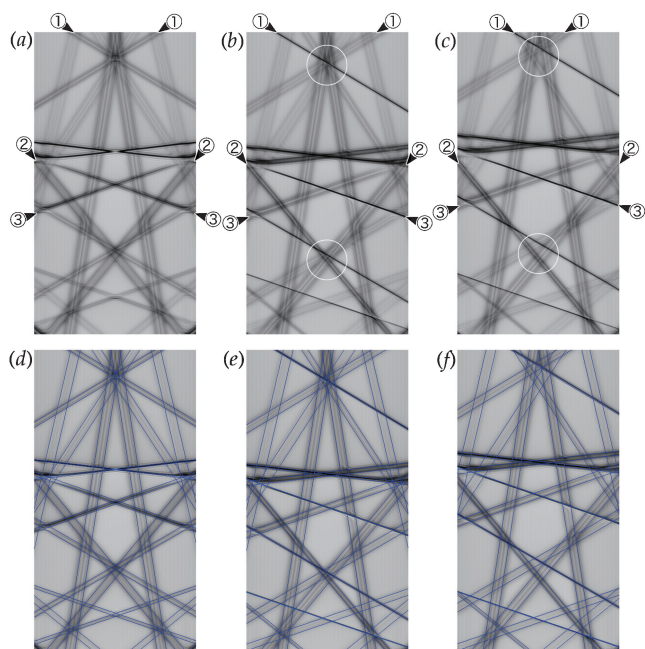


図 4 Howie-Whelan 方程式より計算した湾曲歪みを含む Si 結晶の $[3\ 2\ 0]$ 入射での CBED 図形。(a) 湾曲ベクトル $\mathbf{R} // [0\ 0\ 1]$, $R_{\text{max}} = 1.0$, (b) $\mathbf{R} //$, $R_{\text{max}} = 1.0$, (c) $\mathbf{R} // [3\ \bar{2}\ 9]$, $R_{\text{max}} = 1.0$, $a = 0.550$ nm. (d), (e) および (f) は、 $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}$ に比例した HOLZ 線分裂を与えた運動学シミュレーションを示す。シミュレーションが動力学計算と良い一致を示している。

それに対して、湾曲ベクトルが $\mathbf{R}_2$ の場合(図 4(b) および 4(c)), 結晶学的に等価な HOLZ 線の分裂幅は等しくない。格子定数の変化により HOLZ 線は分裂したままシフトする(例えば白い円の領域参照)。青線は、運動学回折に $8\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} / gt$ ($t = 400$ nm) にしたがって分裂を与えたものである。動力学シミュレーションと非常によい一致を示していることがわかる。

3. 格子定数および湾曲ベクトルの決定

本手法では、実験および計算の HOLZ 線図形を直接比較するのではなく、それらの Hough 変換図形を比較する。直線を抽出する Hough 変換は以下の式で与えられる。

$$H(\theta, \rho) = \int I(x, y) \delta(\rho - x \cos \theta - y \sin \theta) dx dy \quad (3)$$

ここで、 x, y は画像空間での直交座標、 $I(x, y)$ は座標 (x, y) における像強度である。

$$\rho = x \cos \theta + y \sin \theta \quad (4)$$

を満たす点 (x, y) の集合は、 y 軸とのなす角が θ で原点からの距離が ρ の直線となる。したがって、この積分は式(4)で与えられる直線に沿った線積分となる。HOLZ 線図形と Hough 変換の関係を図 5 に示す。複数の HOLZ 線からなる図形の場合、その Hough 変換は同数の複数の点からなる図形となる。後述するように、実験で得た HOLZ 図形の Hough 変換は鋭いピークを示し(図 10 および図 14)、このピーク近傍の強度分布を定量評価することにより、HOLZ 線位置を高精度で決定できる。

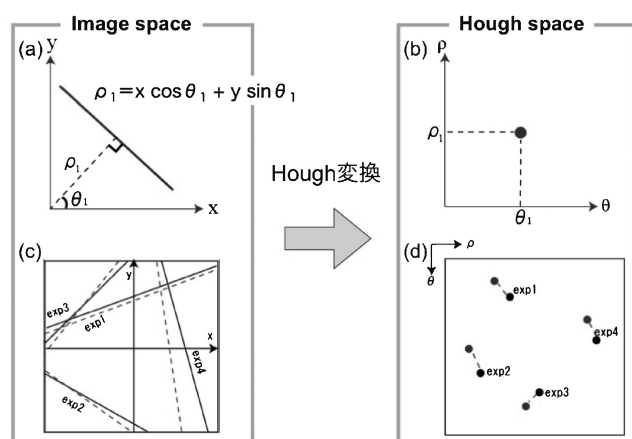


図 5 直線の Hough 変換の模式図。(a) 像にみられる直線状の強度分布。(b) (a) の Hough 変換。直線を表すパラメーター (ρ, θ) に位置する点となる。(c) 複数の線からなる実験 HOLZ 線図形(実線)および計算 HOLZ 線図形(点線)。(d) (c) の Hough 変換。像空間でみられる HOLZ 線と同じ数の点からなる。実験 HOLZ 線図形と計算 HOLZ 線図形のずれを反映して、実験 Hough 図形と計算 Hough 図形の点列は一致していない。両者が一致するように格子定数等のパラメーターを決定する。

実験および計算 HOLZ 線図形が一致したとき、それらの Hough 変換図形も一致する。したがって、HOLZ 線図形のフィッティングは Hough 変換図形に現れるピーク位置のフィッティングと等価である。分裂してない HOLZ 線図形のフィッティングの場合、実験および計算図形の一致度は以下の χ^2 として定義される。

$$\chi^2 = \sum_{i=0}^N \left\{ \frac{(\theta_i^{\text{exp}} - \theta_i^{\text{cal}})^2}{\sigma_{\theta_i}^2} + \frac{(\rho_i^{\text{exp}} - \rho_i^{\text{cal}})^2}{\sigma_{\rho_i}^2} \right\} \quad (5)$$

ここで $(\theta_i^{\text{exp}}, \rho_i^{\text{exp}})$ および $(\theta_i^{\text{cal}}, \rho_i^{\text{cal}})$ は、実験および計算 Hough 変換図形中の i 番目のピークの (θ, ρ) 座標を表す。 σ_{θ} および σ_{ρ} はおもに実験図形のノイズに起因する Hough ピーク位置の誤差である。 N はフィッティングにもちいる Hough ピークの数である。 $(\theta_i^{\text{cal}}, \rho_i^{\text{cal}})$ は格子定数 $(a, b, c, \alpha, \beta, \gamma)$ 、入射方位 $[uvw]$ 、入射電子の加速電圧(波長)、図形の回転および並進、カメラ長から計算される。本手法により、加速電圧を 0.01 kV、格子定数 a, b, c を 10^{-4} nm の精度で決定できることが確認できた⁽⁸⁾。

2 節で述べたように、格子湾曲による HOLZ 線の分裂は $8\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}/gt$ で与えられる。もし格子湾曲が $z=0$ の位置にある xy 面に関して対称である場合、分裂は励起誤差 $s=0$ を満たす線から対称に分裂する(図 6 (a))。すなわち、一方が $4\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}/gt$ だけ原点に近づき、もう一方は $4\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}/gt$ だけ原点から離れる。これらの線の平行移動は、Hough 空間において ρ 方向の変位に対応する。すなわち、一方は ρ の負側に $4\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}/gt$ だけ変位し、もう一方は正側に $4\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}/gt$ だけ変位する(図 6(b))。複数の分裂 HOLZ 線からなる図形の場合、その分裂幅に応じて各 Hough ピークは ρ 方向に分裂する(図 6

(c)および(d))。HOLZ 線の分裂まで考慮した χ^2 は以下のようになる。

$$\chi^2 = \sum_{i=0}^N \left\{ \frac{(\theta_i^{\text{exp}+} - \theta_i^{\text{cal}+})^2}{\sigma_{\theta_i}^2} + \frac{(\rho_i^{\text{exp}+} - \rho_i^{\text{cal}+})^2}{\sigma_{\rho_i}^2} \right\} + \left\{ \frac{(\theta_i^{\text{exp}-} - \theta_i^{\text{cal}-})^2}{\sigma_{\theta_i}^2} + \frac{(\rho_i^{\text{exp}-} - \rho_i^{\text{cal}-})^2}{\sigma_{\rho_i}^2} \right\} \quad (6)$$

ここで、 $(\theta_i^{\text{exp}+}, \rho_i^{\text{exp}+})$ および $(\theta_i^{\text{exp}-}, \rho_i^{\text{exp}-})$ は、 ρ 方向の正側および負側に分裂した Hough ピーク座標を表している。

分裂幅が $8\mathbf{g} \cdot \mathbf{R}/gt$ で与えられるため、ピークの分裂幅から直接決定できる物理量は、 $|\mathbf{R}|/t$ 、すなわち V 字型モデルでの格子面の傾き(の半値)である。 $\mathbf{R}$ の絶対値を決めるには試料の厚さが既知である必要がある。試料の厚さの決定には、例えば、低次反射との 2 波条件で得たロッキングカーブプロファイルが利用できるであろう。

校正した加速電圧(すなわち波長)をもちいて、上記の χ^2 が最小となるように格子定数 $(a, b, c, \alpha, \beta, \gamma)$ 、湾曲ベクトル $\mathbf{R}$ 、入射方位 $[uvw]$ 、カメラ長を決定する。本解析法のフローチャートを図 7 に示す。本手法では点から構成される図形をもちいるので、実験図形および計算図形の各点間の距離の自乗和として図形の一致度が簡便に評価できる。その結果、自動パラメーターフィッティングのアルゴリズムの導入が容易である。

われわれは、本解析手法で格子定数決定を行う GUI を備えたプログラム Quint を開発した。図 8 はそのスクリーンショットである。本プログラムは、実験図形と計算 HOLZ 線図形を重ね合わせて表示し、両図形の一致度を視覚的に判定

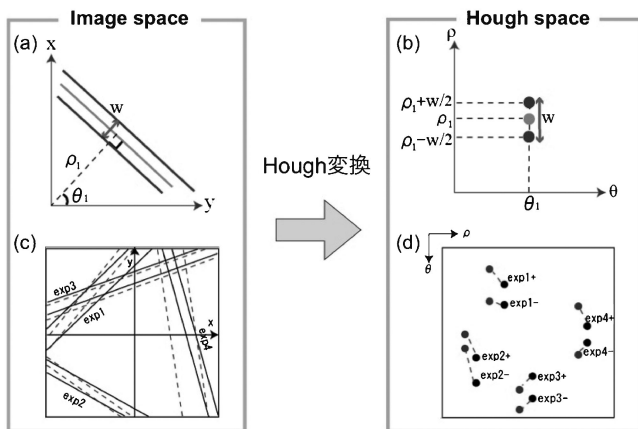


図 6 分裂した HOLZ 線を含む図形に対する Hough 変換の模式図。(a) 像にみられる分裂した直線の強度分布。2 本は互いに平行で w だけ離れている。(b) (a) の Hough 変換。HOLZ 線の分裂に対応して Hough ピークは 2 点となる。2 本の HOLZ 線は傾きが等しいため θ 座標は等しいが、互いに w だけ離れているため、 ρ 方向には w だけ離れている。(c) 複数の分裂線からなる実験 HOLZ 線図形(実線)および計算 HOLZ 線図形(点線)。(d) (c) の Hough 変換。図 4 と同様に Hough ピークの分裂幅まで一致するよう湾曲パラメーターも含めて決定する。

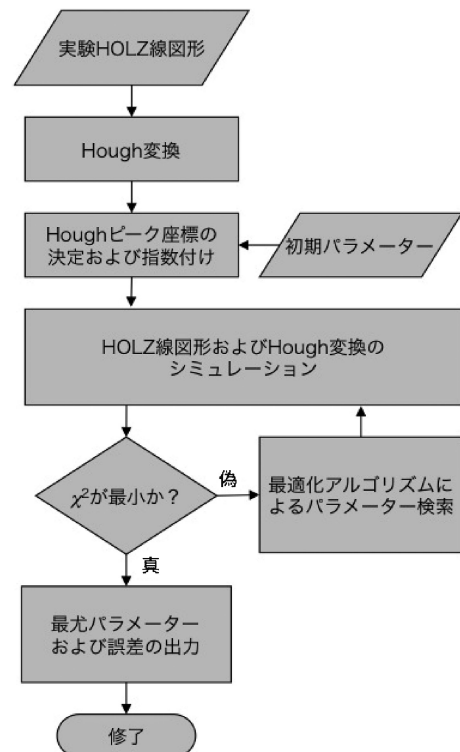


図 7 本解析法のフローチャート。

しながら、格子定数等のパラメーターを決定することができる。実験および計算 HOLZ 線図形を表示するウィンドウとそれら Hough 変換図形を表示するウィンドウからなり、それらは同期して表示される。任意の晶系、格子型に対応しており、また入射方位、加速電圧も任意に設定できる。計算図形の各 Hough ピークを実験図形の対応する Hough ピークにマウス操作等で結びつけ、格子定数($a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$)、加速電圧、入射方位等のパラメーターのすべてもしくは一部を選択してフィッティングすることができる。実験図形と計算図形のずれがある程度小さければ、Hough ピーク座標を自動検索し、あらかじめ設定しておいたパラメーターセットを自動でフィッティングすることができる。プログラムは Windows OS 上で動作する。標準的なパソコン(Intel Pentium 4, 2 GHz)での計算時間は、画素数720×300の Hough 変換図形を得るのに約1分、Hough ピーク30点のサブピクセル分解能での検索に約1分、全フィッティングパラメーターの最適化に約1秒である。

4. 実 験

本手法のテスト試料として、(i) Si 基板上にトレンチ構造を形成した素子分離領域および(ii) Si 基板上に SiGe 薄膜を積層した試料の2つをもちいた。(i)は、Si(001)清浄表面に素子形成後、エッチングによりトレンチ構造を形成し、熱酸化および化学気相成長(CVD)により SiO₂ 膜を成膜することでトレンチを埋め込み、化学機械平坦化(CMP)にて平坦化させた。(ii)は Si(001)清浄表面に分子線エピタキシー法で Si_{0.7}Ge_{0.3}薄膜を100 nm 積層した⁽²⁰⁾⁽²¹⁾。両試料とも機械研磨の後、Ar イオン研磨を行うことで TEM 観察用の断面試料を作製した。

(i) および(ii)の試料の HOLZ 線図形の取得には、透過電子顕微鏡 FEI Tecnai G2 F30および JEOL JEM-2010F をそれぞれ加速電圧 100 kV および 120 kV でもちいた。いずれ

の試料においても入射方位は[320]とした。CBED 図形の記録には画素数 2 k×2 k の16ビット CCD カメラをもちいた。記録時のピクセル分解能(カメラ長)は0.015 nm⁻¹/pixel であった。加速電圧の較正のために表面および界面から十分に離れた格子歪みがないと考えられる Si 基板領域から HOLZ 線図形を撮影した。(i)および(ii)の試料から得た HOLZ 線図形にみられる、それぞれ13本および29本の HOLZ 線をもちいて加速電圧を 99.82 kV および121.32±0.05 kV と決定した。

5. 結果および考察

(1) Si 素子分離領域における応力マッピング

図9は、Si基板上に素子分離構造を形成した試料の断面明視野 STEM 像である。図の白い四角で示した領域から、ビームを xy 方向に 50 nm 間隔で走査しながら 20×20 枚の CBED 図形を取得した。ここでは、分裂を示す HOLZ 線はみられなかったため、湾曲歪みは無いと考え、格子定数のみの決定を行った。HOLZ 線図形が[001]方向に垂直な鏡映対称を示していたことおよび a 方向と b 方向の等方性から、 $a=b$, $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$, すなわち正方晶を仮定した。したがって、ここで決定する格子定数は、 a および c となる。

図10(a)および10(b)は、本試料から得た HOLZ 線図形および本手法により決定した格子定数をもちいて計算した HOLZ 線図形を青線で重ね合わせたものである。図10(c)は図10(b)の Hough 変換である。ここでは、Hough 変換のコントラストを反転して表示している。透過ディスクにみられる13本の HOLZ 線をもちいて格子定数を決定した。

界面垂直方向([001]方向)および平行方向の格子伸縮を評価するために以下の式で与えられるを計算した。ここで a_0 は Si バルク試料の室温での格子定数 $a_0=0.54309$ nm である。

$$\varepsilon = \varepsilon_{aa} - \varepsilon_{cc} = \frac{a - a_0}{a_0} - \frac{c - a_0}{a_0} \quad (7)$$

図11はその値をマッピングしたものである。Si 基板のデバイス領域の端部で[001]方向に圧縮し、その垂直方向に伸張する歪みを受けていることがわかる。

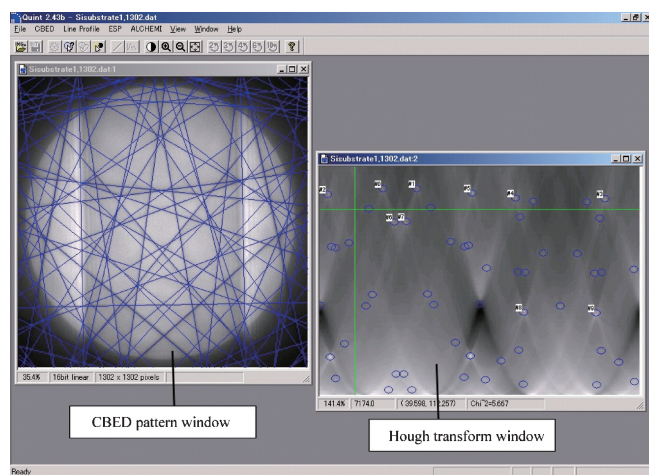


図8 本研究で開発したソフトウェアのスクリーンショット。

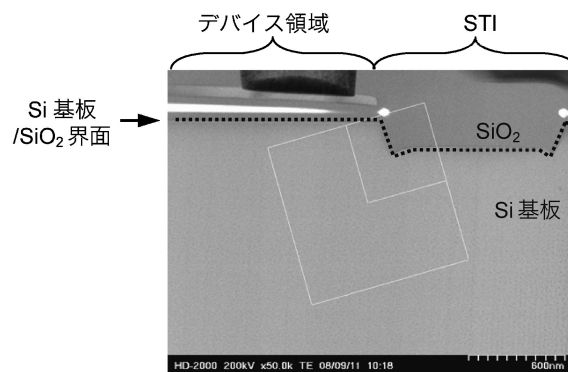


図9 本手法を適用した Si 基板素子分離領域の断面 STEM 像。

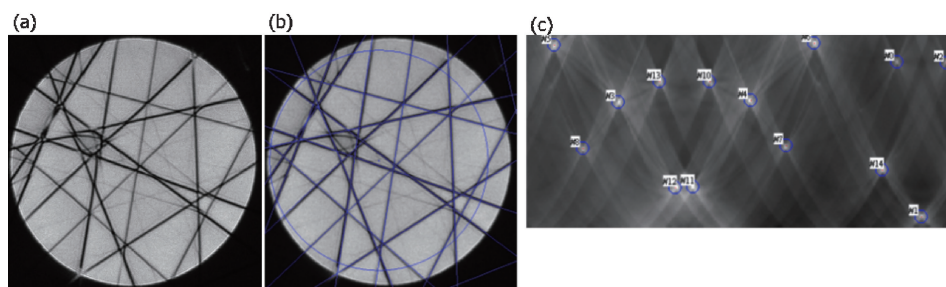


図10 (a) 図6の試料から得た HOLZ 線図形. (b) 本手法により決定した格子定数を用いて計算した HOLZ 線図形を重ね合わせたもの. (c) (b)の Hough 変換.

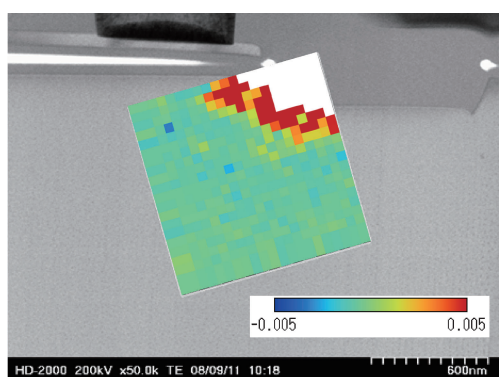


図11 図9の白い四角で示した領域における歪み ε 量のマップ. デバイス領域端部に歪みが集中している様子がわかる.

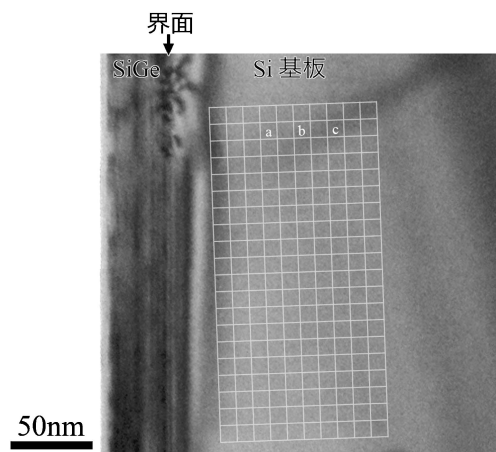


図12 本解析手法を適用した SiGe/Si 積層膜の断面 TEM 像. 図中のマス目の位置から CBED 図形を取得した.

(2) SiGe/Si 界面近傍の歪み解析

図12は Si 基板上に SiGe を積層した試料の断面 TEM 像である. 図中の四角で示すシリコン基板領域からビームを xy 方向に 15 nm 間隔で走査しながら 10×20 枚の CBED 図形を取得した. この領域の試料厚さは約 200 nm であった.

図13(a)~(c)は, それぞれ図12の TEM 像に示す点 a~c から撮影した HOLZ 線図形である. 界面に近づくほど

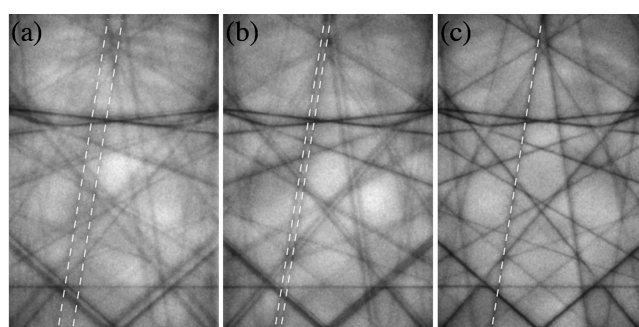


図13 図12の a~c から得た HOLZ 線図形.

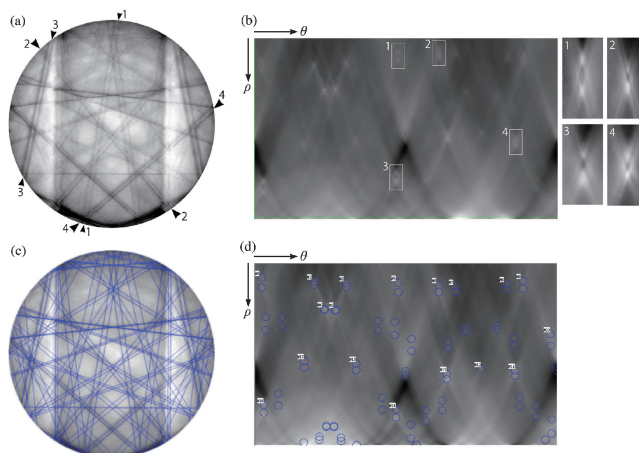


図14 (a) 図10(c)の HOLZ 線図形全体. HOLZ 線の分裂がみられる. (b) (a)の Hough 変換. Hough ピークの分裂が明瞭にみられる. (c) および (d) は, (a) および (b) に分裂を考慮した運動学回折シミュレーション(青線)を重ね合わせたもの.

HOLZ 線の分裂幅が増大していることがわかる.

図14(a)および(b)は図13(c)の HOLZ 線図形全体およびその Hough 変換である. Hough 変換のコントラストを反転して表示している. Hough 変換図形の θ および ρ 座標はそれぞれ水平および垂直方向にとっている. 白い四角で囲われた 1 から 4 の Hough ピークは図14(a)の 1 から 4 の HOLZ 線に対応している. HOLZ 線図形中で分裂した HOLZ 線の対が, Hough 空間では ρ 方向に分裂した Hough ピークの対に変換されているのがわかる. ピーク位置の平均決定精度は θ

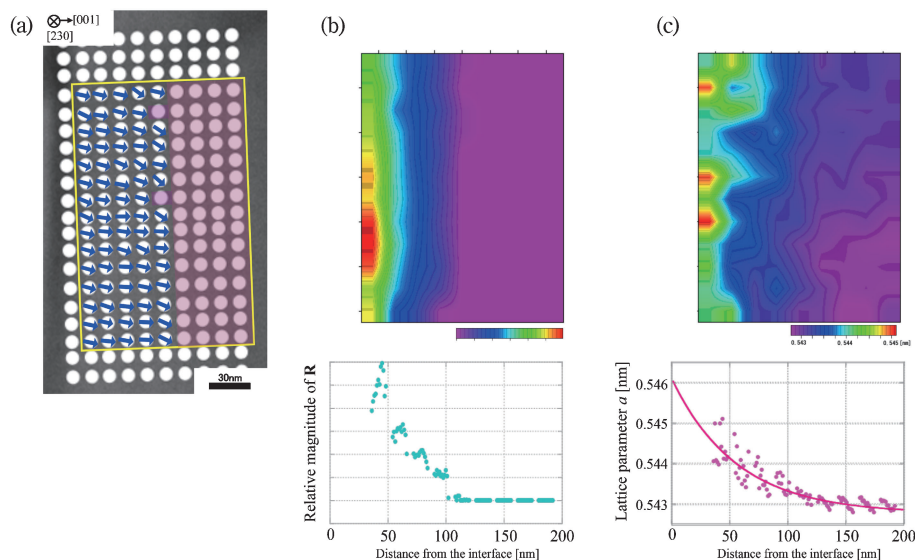


図15 SiGe/Si 界面近傍の Si 領域から本手法で計測した湾曲ベクトル $\mathbf{R}$ の方向 (a), 大きさ $R_{\max}$ (b) および格子定数 a (c) のマップ。

方向に 0.3 deg , ρ 方向に 0.8 ピクセルであった。

ここでは図 2 (b) に示す 2 次元格子を、やや粗い近似ではあるが、立方晶のままである仮定した。したがって決めるべきパラメーターは湾曲ベクトル $\mathbf{R}$ の方向およびその大きさ $R_{\max}$ と格子定数 a すなわち単位胞の一边の長さである。23 対の分裂した HOLZ 線をもちいて最小 2 乗フィッティングを行った結果、 $\mathbf{R}$ および a はそれぞれ $0.095[0.0 \ 0.0 \ 1.0]$ および $0.5435 \pm 0.002 \text{ nm}$ と決定できた。ここで試料厚さ t は 200 nm と仮定した。実験図形にみられる HOLZ 線の位置が計算図形と非常によく一致していることがわかる。

同様の解析を他の CBED 図形にも適用し、 $\mathbf{R}$ および a を決定した。図 15 (a), (b) および (c) は $\mathbf{R}$ の方向, $R_{\max}$ および格子定数 a のマップである。

界面から 100 nm 以上離れた領域では、HOLZ 線の分裂が明瞭にみられなかったため、湾曲歪みはないと考えた。 $\mathbf{R}$ の向きのマップから、湾曲の向きはいずれの領域でもほぼ界面に垂直な方向 ($[001]$ 方向) を向いていることがわかる。 $R_{\max}$ および a のマップから、界面近傍で湾曲および伸張歪みが最も大きく、界面から離れるにつれて徐々に湾曲歪みおよび伸張歪みが緩和していく様子がみられる。 $R_{\max}$ および a の値は、界面から等距離の位置ではほぼ一定であるが、特に界面近傍領域で揺らいでいる様子もみられる。この揺らぎは界面に存在する構造的不均一性によるものと考えられる。 $\mathbf{R}$ の向きおよび格子定数 a のマップを注意深くみると、 $\mathbf{R}$ の向きは平均的に $[001]$ 方向からわずかに時計回りに回転しており、また格子定数 a は界面から 100 nm 離れた付近で界面平行方向に傾斜しているのがみられる。これは界面に存在する転位等の影響であると考えている。実際、図 12 の TEM 像の界面部分の上方に転位の存在を示唆する回折コントラストがみられる。

本研究で観察した分裂 HOLZ 線の多くは励起誤差 $s=0$ の

位置 (湾曲変位が無い場合に HOLZ 線が現れる位置) に関して対称に分裂していた。このことは、湾曲変位が $z=0$ の xy 面に関して対称であることを意味する。もし湾曲変位が $z=0$ に対して対称でない場合、分裂した HOLZ 線が $s=0$ に関して対称に変位せず、そのロッキングカーブが非対称となることは、たとえば対称な湾曲歪み関数 $\mathbf{R}(z)$ を z 方向に Δz 変位させた関数 $\mathbf{R}(z-\Delta z)$ をもちいたシミュレーションにより確かめられる。ただし、そのような非対称化を行っても分裂幅は変わらないため、非対称な湾曲歪みに対しても分裂幅から湾曲ベクトル $\mathbf{R}$ を決定することができる。

本手法において、格子定数および湾曲ベクトルの決定誤差は Hough ピーク座標 ($\theta_{\text{peak}}, \rho_{\text{peak}}$) の決定誤差から生じる。Hough ピーク座標の決定誤差 $\Delta\theta \sim 0.1 \text{ deg}$. および $\Delta\rho \sim 0.5$ は、動力学回折効果による HOLZ 線の曲がりおよび実験図形のノイズに起因している。これらの寄与を定量的に比較したところ、おもな誤差の原因は、HOLZ 線図形のノイズに由来していることが判明した。本手法では、この $\Delta\theta$ および $\Delta\rho$ を σ_θ および σ_ρ としてもちいている。

CBED 法をもちいた格子定数決定法の多くは、HOLZ 線の交点間の距離をもちいる。すなわち、実験図形にみられる HOLZ 線の交点の距離と計算図形中の交点間距離が一致するようパラメーターを決定する。本手法は、この「交点法」と比べて、カメラ長および図形の並進・回転を表す余分なパラメーターを決定する必要がある。これにより格子定数の決定精度が低下してしまう。しかしながら、 $\sigma_\theta = 0.1 \text{ deg}$. および $\sigma_\rho = 0.5$ ピクセル (2 nm^{-1}) の精度で位置の定まった 20 程度の HOLZ 線をもちいることで、格子定数 a, b, c が 10^{-4} nm の精度で、 α, β, γ が 10^{-2} deg . の精度で決定できることが確認された。交点法は、エネルギーフィルター等の収差による HOLZ 線図形の大域的な歪みに強いものに対して、本手法では回折図形の歪みの影響を受けやすい。したがって電子

顕微鏡およびエネルギーフィルター装置の光軸調整をなるべく正確に行っておく必要がある。標準試料等で回折図形の歪みが校正できれば、アフィン変換等をもちいて歪み補正を行うことが出来るであろう。格子歪み分布をマッピングする他の手法として暗視野ホログラフィー法がある⁽²²⁾。この手法は、無歪み領域からの回折波を参照波、歪み領域からの回折波を物体波として得られるホログラムから歪みの分布を直接可視化する手法である。回折波として ZOLZ 反射を使うため、2 次元的な変位場 (ϵ_{xx} , ϵ_{yy} , ϵ_{xy} , ω_{xy}) を可視化することはできるものの、湾曲歪みなど電子線の伝播方向に沿って非一様な変位場を評価することはできない。

6. ま と め

本稿では、CBED 図形の透過ディスクにみられる HOLZ 線図形をもちいて、格子の一樣伸張・圧縮歪みのみならず、湾曲歪みを計測する手法を開発した。本手法では、HOLZ 線のロッギングカーブの詳細なプロファイルが必要とせず、分裂した HOLZ 線の間隔のみから湾曲方向およびその大きさを決定する。本手法の特徴のひとつは、実験および計算 HOLZ 線図形を Hough 空間中の点図形で比較するため、多くの分裂 HOLZ 線からなる複雑な図形でも簡便に図形の一致度が評価できる点である。この特徴は 2 次元ビーム走査と併せた自動解析を行う場合⁽¹⁵⁾⁽²³⁾や多くの試料を迅速に評価しなければならない材料開発の現場において重要になるであろう。本手法で扱える湾曲歪み $R(z)$ は、HOLZ 線の分裂幅が $g \cdot R$ に比例するようなもののみに限られる。モデルフリーでの歪み場の解析には、HOLZ 反射のロッギングカーブの詳細なプロファイルが利用できるであろう⁽¹⁶⁾⁽²⁴⁾。

本研究を進めるにあたり、有意義なご意見をくださった田中信夫先生、実験の補助をしてくれた安田佳史さん、濱邊麻衣子さん、試料をご提供くださった財満鎮明先生、酒井朗先生、中塚理先生に感謝いたします。本研究の一部は、文部科学省科学研究費補助金基盤研究(B)(20360007)および稲盛財団からの援助により行いました。ここに感謝いたします。

文 献

- (1) R. Uyeda, M. Nonoyama and M. Kogiso: J. Electron Microsc., **14**(1965), 46–50.
- (2) J. M. Zuo: Ultramicroscopy, **41**(1992), 211–223.
- (3) S. Krämer and J. Mayer: J. Microsc., **194**(1998), 2–11.
- (4) U. Kaiser, K. Saitoh, K. Tsuda and M. Tanaka: J. Electron

Microsc., **48**(1999), 221–233.

- (5) T. Akaogi, K. Tsuda, M. Terauchi and M. Tanaka: J. Electron Microsc., **55**(2006), 129–135.
- (6) A. Toda, N. Ikarashi, H. Ono and K. Okonogi: Appl. Phys. Lett., **80**(2002), 2278–2280.
- (7) Z. Lu, F. Pyczak, S. Krämer, H. Biermann and H. Mughrabi: Phil. Mag., **83**(2003), 2383–2397.
- (8) K. Saitoh, Y. Yasuda and N. Tanaka: Int. J. Adv. Microsc. Theoretical Calculations, **1**(2008), 90–91.
- (9) D. Cherns, C. J. Kiely and A. R. Preston: Ultramicroscopy, **24**(1988), 355–370.
- (10) R. Vincent, A. R. Preston and M. A. King: Ultramicrosc., **24**(1988), 409–420.
- (11) C. T. Chou, S. C. Anderson, D. J. H. Cockayne, A. Z. Sikorski and M. R. Vaughan: Ultramicroscopy, **55**(1994), 334–347.
- (12) A. Chuvilin, U. Kaiser, Q. de Robillard and H.-J. Engelmann: J. Electron Microsc., **54**(2005), 515–517.
- (13) F. Houdellier and C. Roucau and L. Clément and J. L. Rouvière and M. J. Casanove: Ultramicrosc., **106**(2006), 951–959.
- (14) T. Soeda: Proceedings of International Microscopic Congress, Sapporo, Japan, (2006), 1021.
- (15) A. Armigliato, R. Balboni and S. Frabboni: Appl. Phys. Lett., **86**(2005), 063508.
- (16) A. Spessot, S. Frabboni, R. Balboni, A. Armigliato and J. Microsc., **226**(2007), 140–155.
- (17) K. Tsuda, H. Mitsuishi, M. Terauchi and K. Kawamura: J. Electron Microsc., **56**(2007), 57–61.
- (18) T. Yamazaki, A. Kashiwagi, K. Kuramochi, M. Ohtsuka, I. Hashimoto and K. Watanabe: J. Electron Microsc., **57**(2008), 181–187.
- (19) K. Saitoh, Y. Yasuda, M. Hamabe and N. Tanaka: J. Electron Microsc., **59**(2010), 367–378.
- (20) A. Sakai, K. Sugimoto, T. Yamamoto, M. Okada, H. Ikeda, Y. Yasuda and S. Zaima: Appl. Phys. Lett., **79**(2001), 3398–3400.
- (21) T. Egawa, A. Sakai, T. Yamamoto, N. Taoka, O. Nakatsuka, S. Zaima and Y. Yasuda: Appl. Surf. Sci., **224**(2004), 104–107.
- (22) M. Hÿtch, F. Houdellier, F. Hÿe and E. Snoeck: Nature, **453**(2008), 1086–1089.
- (23) V. Senez, A. Armigliato, I. De Wolf, G. Carnevale, R. Balboni, S. Frabboni and A. Benedetti: J. Appl. Phys., **94**(2003), 5574–5583.
- (24) R. Vincent, T. D. Walsh and M. Pozzi: Ultramicroscopy, **76**(1999), 125–137.



齋藤 晃

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
 1996年 3月 東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程修了
 1996年 4月 東北大学科学計測研究所(現多元物質科学研究所)助手
 2003年12月 産業技術総合研究所特別研究員
 2004年 7月 名古屋大学エコトピア科学研究機構(現エコトピア科学研究所)講師
 2009年 4月～現職
 専門分野：電子線結晶学
 ◎電子顕微鏡をもちいた結晶構造および電子構造解析手法の研究に従事。最近では電子らせん波の研究も行っている。
 ★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★