マイクロレンズアレイを用いた表面プラズモン共鳴による膜厚分布測定

兼岡 良樹^{*1}, 坂下 竜一^{*1}, 水谷 康弘^{*2}, 岩田 哲郎^{*3}

Measurement of film thickness distribution by surface plasmon resonance using a micro-lens array

Yoshiki KANEOKA^{*1}, Ryoichi SAKASHITA^{*1}, Yasuhiro MIZUTANI^{*2} and Tetsuo IWATA^{*3}^{*1} Graduate School of Advanced Technology and Science, Tokushima University
2-1 Minamijosanjima-cho, Tokushima-shi, Tokushima 770-8506, Japan^{*2} Department of Mechanical Engineering, Osaka University
2-1 Yamadaoka, Suita-shi, Osaka 565-0871 Japan^{*3} Institute of Technology and Science, Tokushima University
2-1 Minamijosanjima-cho, Tokushima-shi, Tokushima 770-8506, Japan

Received 22 May 2015

Abstract

In order to measure the two-dimensional distribution of the thickness of a metal layer coated on a dielectric layer at a time, we propose to use a micro-lens array (MLA), instead of a conventional single plano-convex lens, by which lots of surface-plasmon-resonance (SPR) dip patterns could be observed from a modified Otto configuration. The individual micro lenses produce circular ring-shaped SPR dip patterns in reflection, which enable us to estimate the thickness of the metal with high sensitivity and precision with ease. A spatial resolution is determined by the size of each lens and is 300 μm in diameter. As a proof-of-the-principle experiment, we measured the thickness of a 50nm-thickness Au film with precision ± 0.9 nm for an area of 2.7 mm $\times$ 2.7 mm. A method for improving the spatial resolution further is discussed.

Key words : Surface plasmon resonance, Microlens array, Modified Otto configuration, Thin film measurement, Thickness distribution

1. 緒 言

半導体電子部品,あるいは光半導体素子などの製造工程においては,例えばガラスなどの誘電体媒質上に蒸着されたナノオーダの金属薄膜の厚さの二次元的な一様性,すなわち膜厚分布を正確かつ精度よく,しかも高速かつ簡便に評価する手法が求められている(Macleod, 1986). 金属の種類としては,金,銀,銅,アルミニウムなどが一般的である. そのための測定手法としては,電磁誘導に基づく接触式膜厚計を用いる方法,超音波を用いる手法,スペクトル干渉を用いる方法などがある(Placko, et al., 1989; Flournoy, et al., 1972). しかし,前者2つは接触測定が前提であり,膜厚検出下限もマイクロオーダに留まっている. 膜厚が十分薄いと仮定するとスペクトル干渉測定が行えるが,やはり波長以下の測定精度は得にくいのが実情である. そこで,そのようなオーダの膜厚を測定する場合にはエリプソメータの採用を検討することになる. エリプソメータではサブナノオーダの測定が精度よく行え,場合によっては膜の複素屈折率も推定できる(Azzam and Bashara, 1989). しかし,測定対象に対する正確な光学モデルを必要とし,測定の信頼性を向上させようと思えば,入射角度や波長を変化させる必要も時には生じる. 結果として装置は大がかりで高価となってしまう. 何よりたとえこれをクリアしたとしても,膜厚の二次元分布の取得のためには,試料を二次元に掃引する必要があり,測定に時間がかかってしまう.

このような問題を解決するための手法の一つとして,表面プラズモン共鳴(SPR: Surface Plasmon Resonance)の利

No.15-00291 [DOI:10.1299/transjsme.15-00291], J-STAGE Advance Publication date : 9 September, 2015

^{*1} 徳島大学大学院 先端技術科学教育部 (〒770-8506 徳島県徳島市南常三島町 2-1)

^{*2} 大阪大学 大学院工学研究科 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

^{*3} 正員, 徳島大学 大学院ソシオテクノサイエンス研究部

E-mail of corresponding author: mizutani@mech.eng.osaka-u.ac.jp

用が考えられる(Rothenhäusler and Knoll, 1988). SPR とは, 金属原子の自由電子の縦波プラズマ振動の波数と入射 p 偏光の金属表面に平行な波数成分とが金属表面と周囲の誘電体媒質間の境界で共鳴カップリングする現象である. それが生じると反射光強度が低下する. したがって, 入射光角度を変化させながら反射光強度を入射角の関数としてプロットすれば(そのプロットを反射光角度スペクトルと呼ぶ)共鳴ディップが現れる. 共鳴条件は金属薄膜の膜厚とその複素屈折率, および周囲の誘電体媒質の複素屈折率に依存しているため, すべての複素屈折率が既知であれば, 測定した反射光角度スペクトルの共鳴ディップの位置のシフトや形状から膜厚を推定することができる. このように, SPR では簡単な反射光強度測定をしているのにもかかわらず, 測定精度と感度はエリプソメータのそれらに匹敵することが確認されている(Salvi and Barchiesi, 2014).

SPR を発生させるための光学系としては, Kretschmann 配置と Otto 配置の 2 つがある(Kretschmann, 1971; Otto, 1968). Kretschmann 配置の基本形は, ガラス層, 金属, 誘電体媒質の三層系で構成される. 一方, Otto 配置はガラス層, 空気層, 金属, 基板からなる 4 層系となる. ここで, 金属薄膜自身の測定のためには, 空気層がプリズムと金属間にいわばバッファ層として入る Otto 配置が適している. しかし SPR を発生させるためには, その空気層の厚さをナノオーダーで制御する必要がある. この問題を緩和する手法として, 変形 Otto 配置光学系がある(Bliokh, et al., 2006). これは, Otto 配置のガラス層として平凸レンズを用いる. 平凸レンズを用いるため空気層の厚さはレンズの曲面に沿って変化する. したがって, SPR の発生に必要な空気層の厚さを機械的制御することなしにナノオーダーで連続的に変えられる. このとき, 共鳴条件を満たす厚さの空気層の位置での反射率ディップ形状は同心円環状となる. 最終的に, 環状に現れた反射光の強度分布を測定することでその位置での金属膜厚を推定することができる. これまでに, 我々は変形 Otto 配置光学系にエリプソメータの光学系を導入して, 数 10 nm~ 数 100 nm の金属膜上の誘電体膜の厚さを 1nm 以下の精度で測定できることを報告した(Iwata and Mizutani, 2010; Mizutani and Iwata, 2011). さらに平凸レンズの代わりにシリンドリカルレンズを用いて 2 本の平行な直線のディップでも測定ができることを示した(Iwata et al., 2011). しかし, 環状に現れる強度分布 1 つにつき測定できる膜厚の数は 1 つであるため, 膜厚の分布を測定するにはサンプルを走査する必要があった. また, エリプソメータの導入は測定の精度を向上させられるものの, 冒頭に述べたような金属薄膜の膜厚二次元分布測定の目的にはややオーバースペックである.

以上の問題点を解決するために, 我々は, 微小レンズの集合体であるマイクロレンズアレイ(MLA: Micro Lens Array)に着目した. すなわち, 変形 Otto 配置で用いるレンズとして, 従来の単一平凸レンズの代わりに MLA を用い, それぞれのマイクロレンズ毎に, 微小環状の SPR 共鳴ディップを二次元平面上で規則的に多数個発生させた. その結果, 走査することなくレンズのサイズとその曲率半径に応じた空間分解で膜厚分布が推定できるようになった. 本報告では, エリプソメータの光学系を導入せずに MLA を用いた変形 Otto 配置光学系で, 厚さ 50 nm の金の膜厚分布をナノオーダーの精度で空間分解 300 μm 程度で測定できることを示す.

2. MLA を用いた膜厚測定原理

図 1 (a)に, MLA を用いた変形 Otto 配置による SPR 発生の様子を示す. 試料は, ガラス基板上に製膜された金属薄膜であり, MLA とわずかな厚みの空気層を挟んで配置されている. また, ここでは金属薄膜が階段状の膜厚を有すると仮定している. 図 1 (b)に, このときのエネルギー反射率分布を示す. 変形 Otto 配置に MLA を用いるため, 各レンズに対して環状の共鳴ディップが現れている. また, 膜厚の変化に応じて共鳴ディップの形状が異なる. したがって, 共鳴ディップを個別に評価することで膜厚の分布を測定できる.

ここで, サンプル面上の位置 (x,y) におけるエネルギー反射率 $R(x,y)$ は,

$$R(x,y) = \left| \frac{r_{12}[1 + r_{23}r_{34} \exp \alpha_3] + [r_{23} + r_{34} \exp \alpha_3] \exp \alpha_2}{1 + r_{23}r_{34} \exp \alpha_3 + r_{12}[r_{23} + r_{34} \exp \alpha_3] \exp \alpha_2} \right|^2 \quad (1)$$

となる. ここで, α_n は,

$$\alpha_n = 2i\sqrt{\varepsilon_n k_0^2 - k_x^2} h_n \quad (2)$$

である. $r_{n(n+1)}$ は各層間の反射係数, h_n は各層の膜厚, ε_n は各層の誘電率, k_0 は測定光の波数, k_x は界面に角度 θ で入射する光の界面方向の波数である(Iwata and Mizutani, 2010). 式(1)および(2)からわかるように, $R(x,y)$ はサンプルの膜厚に依存するため, 複素誘電率が既知であれば反射光強度から膜厚を推定できる. 本研究では, 膜厚を求めるために, 環状の反射光強度減衰領域の中心を通る断面の強度分布と式(1)より算出した理論曲線とのフィッティングを行った.

Fig. 1 (a) A schematic diagram of the modified Otto's configuration using MLA, (b) a two-dimensional fringe pattern obtained from the configuration shown in (a).

3. 数値計算による測定条件の決定

金属薄膜の膜厚を推定するためにはそれ以外のパラメータが既知である必要がある. そこで, 入射波長, 入射角および空気層厚さを決定するために, エネルギー反射率の入射角および波長依存性とエネルギー反射率の空気層厚さおよび入射角依存性を, 式(1)および(2)をもとに数値計算により確認した. 図2に, 数値計算に用いた光学モデルを示す. このモデルはBK7プリズム, MLA, 空気層, Au 薄膜およびガラス基板の5層で構成されている. まずは, 入射波長と入射角を変数としてエネルギー反射率を算出した. 図3に, 数値計算により得られたエネルギー反射率の入射角および波長依存性を示す. 図3より, 臨界角より小さい角度では波長が400 nm から600 nm 付近でエネルギー反射率が小さいことがわかる. これは, この波長域でSPRに依らず金が光を吸収するためである. 一方, 入射角が45 deg.付近に着目すると, 波長が600 nm から800 nm の範囲で急峻な吸収ディップを有する領域がある. この吸収がSPRに依るものである. そこで, 本研究では波長632.8 nm のHe-Ne レーザを用いることにした.

Fig.2 An optical model used for numerical simulations.

Fig. 3 R_p as functions of θ and λ , where $d_{Au} = 50$ nm and the thickness of the air gap is 500 nm.

次に、入射波長を 632.8 nm に固定し、エネルギー反射率の空気層厚さおよび入射角依存性を確認した。図 4 に、エネルギー反射率の空気層厚さおよび入射角依存性の数値計算結果を示す。このとき、Au の複素屈折率は $n_{Au} = 0.172 + 3.440i$ とした。図 4 より、空気層の厚さが 1000 nm を超えるとエネルギー反射率が大きく下がっている部分が確認できないため、この領域では SPR が発生しないことがわかる。また、エネルギー反射率が最小となるのは、入射角が 43 deg., 空気層の厚さが 448 nm のときであることを確認した。このことから、変形 Otto 配置において、空気層の厚さが 448 nm の点で SPR による吸収ディップが発生すれば、金の膜厚が 50 nm であると評価することが可能となる。このことから、本研究では、入射角をエネルギー反射率が最小となる 43 deg., 空気層厚さを SPR が発生する 0~1000 nm 程度とした。

Fig. 4 R_p as functions of the thickness of the air gap and θ , where $d_{Au} = 50$ nm and $\lambda = 632.8$ nm.

以上のように算出した空気層厚さが、本実験で今回使用する MLA により満たされているかを確認するために MLA の表面形状を白色干渉計により測定した。図 5 に、白色干渉計により測定した MLA の表面形状を示す。測定は、白色干渉計である非接触表面形状測定機 (Zygo 社 : Nexview) を用いて測定した。図 5 より、複数配列されたレンズの曲面が確認でき、レンズの直径は 300 μm , 曲率半径は 8.4 mm であった。また、レンズの厚さは 1.37

μm であった。よって、所望の空気層厚さが得られる。この結果をもとに、金属薄膜の膜厚に対するエネルギー反射率の変化を数値計算により検討した。金の膜厚を 49, 50 および 51 nm としてエネルギー反射率の数値計算を行った。図 6(a)および(b)に、算出したエネルギー反射率およびエネルギー反射率に対する金薄膜の膜厚依存性の計算結果をそれぞれ示す。図 6(a)に示すとおり、レンズ端から 70 および 230 μm 離れた領域でエネルギー反射率が低下している。さらに、図 6(a)の実線で囲んだ領域を拡大した図 6(b)に着目すると、各膜厚でエネルギー反射率曲線の形状に差が生じていることがわかる。このことより、MLA を用いた場合のエネルギー反射率は 1 nm 程度の変化に対して感度があることがわかる。さらに、膜厚の測定可能範囲について定量的に評価するために、極小値に着目し数値計算をした。図 7 に、エネルギー反射率の最小値の金膜厚依存性の計算結果を示す。縦軸にエネルギー反射率の最小値、横軸に金膜厚を示す。図 7 より、膜厚の増加によりエネルギー反射率の最小値も増加していることがわかる。また、膜厚が 25~70 nm の範囲において変化量が大きくなっていることから、金膜厚が 25~70 nm の範囲で膜厚測定が可能であることがわかる。

Fig. 5 A surface profile of MLA.

Fig. 6 (a) R_p -dip patterns for d_{Au} = 49, 50 and 51 nm, and (b) enlarged view of (a).

Fig. 7 Minimum value of R_p as a function of d_{Au} .

4. MLA を用いた膜厚の分布測定システム

数値計算により得られた条件をもとに測定システムを構築した．図8に，MLAを用いた変形Otto配置による膜厚分布測定システムを示す．光源には，波長632.8 nm，出力10.0 mWのHe-Neレーザを用いた．光源から出射された光は，15倍のコリメータレンズを用いてビーム径を拡大して12 mmとし，回転拡散板を用いてスペckルノイズを除去した後に，偏光子を用いて p 偏光にし，プリズムおよびMLAに入射させた．なお，MLAは，マッチングオイルを用いてプリズムと光学接触させている．試料は，数値計算と同様に厚さが50 nmの金薄膜を用い，MLAに接触するように設置した．MLAで反射した光をレンズおよびCCDカメラを用いて検出した．

Fig. 8 A schematic diagram of the optical system.

5. 変形 Otto 配置を用いた SPR による金属膜厚の分布測定

まず，測定原理確認のため，本報告で用いた MLA に比べサイズが十分に大きい単レンズを用いて膜厚を測定した．単レンズのレンズ直径は 30 mm，曲率半径は 259.5 mm のものを用いた．図 9 に，エネルギー反射率の測定結果を示す．図 9 (a)に，取得した画像を示し，図 9 (b)に，図 9 (a)の Y-Y'断面のエネルギー反射率分布を示す．点線は測定値および実線はフィッティング曲線である．このフィッティング曲線は測定値と理論曲線との残差二乗和を最小化させることにより得た．また，エネルギー反射率の理論曲線は，与えられたレンズの幾何学的形状から断面に沿った空気層の厚さが算出できるため，プリズム/レンズ/空気/金薄膜/ガラス基板の 5 層系として求めた．図 9 (a)より，エネルギー反射率が低下している部分が環状になっていることが確認できる．このことから，環状の部

分で SPR が発生していることがわかる. 図 9 (b)より, 金の膜厚を算出すると 50.0 nm となり, サンプルの厚さ 50 nm とよい一致を示した. このことより, 変形 Otto 配置を用いて膜厚が測定可能であることを確認した.

Fig. 9 (a) A two-dimensional fringe pattern due to the conventional SPR obtained from the modified Otto-configuration, and (b) the R_p -profile along the Y-Y' cross section depicted in (a).

単レンズを用いた膜厚測定が可能であることを確認したため, MLA を用いて反射率の分布を取得し, 金薄膜の膜厚の分布を測定した. 図 10 (a)に, 9×9 個に配列されたレンズの領域でのエネルギー反射率の分布を示す. 図 10 (a)より, エネルギー反射率が環状に低下している箇所が 9×9 箇所確認できた. これは, SPR に起因した環状の分布である図 10 (b)に, 各環状のエネルギー反射率分布と理論曲線とのフィッティングから膜厚を算出した結果を示す. 9×9 の領域の金膜厚の平均値は 49.8 nm, 標準偏差は 0.9 nm となり, 設計値に近い値となった. 図 5 の測定で用いた非接触表面形状測定機を用いて, このようなナノメートルオーダーの 2 次元膜厚分布を求めるのは精度的にかなり難しいと思われる. 以上より, 本システムを用いて膜厚の分布測定が可能であることを示した.

Fig. 10 (a) A two-dimensional fringe pattern obtained from the modified Otto-configuration using MLA, and (b) a two-dimensional Au film thickness distribution calculated from (a).

6. 結 言

MLA を用いた SPR による膜厚分布測定法を提案した。原理確認のため、レンズ直径 30 mm, 曲率半径 259.5 mm の単レンズを用いて膜厚を測定した。測定値は 50.0 nm となり設計値と一致した。レンズ直径 300 μm の MLA を用いた変形 Otto 配置で 9×9 箇所の SPR の発生を確認した。測定領域での平均値および標準偏差は 49.8 ± 0.9 nm であり、設計値 50 nm に近い値となった。その結果、MLA を用いた変形 Otto 配置光学系を用いて膜厚の 2 次元分布計測が可能であることを示した。なお、本報では原理検証のため試料として金薄膜自身の膜厚を測定した。しかし、適切な光学モデルが仮定できれば、金薄膜上にコートされた誘電体薄膜試料の膜厚や複素屈折率測定が可能であるのは明らかである。本実験では示せなかったが、MLA もしくは試料を回転させて複数回の測定結果の比較や再現性の検証が行える高精度な機構が用意できたならば、さらに測定結果の信頼性が向上したはずである。今後は、それらも含めて MLA の直径をさらに小さくすることで、空間分解能の向上が期待できる。また、MLA 直径を検出器の素子サイズ程度まで小型化することで反射光強度が平均化される。その場合、もはや円環状のディップパターンは消失し、試料厚さに応じた濃淡画像となる。しかしそのような状況でもその濃淡に応じて膜厚分布が推定できる。

References

- Azzam, R. M. A. and Bashara, N. M., Ellipsometry and polarized light, North Holland, Amsterdam (1989).
- Bliokh, Yu. P., Vander, R., Lipson, S. G. and Felsteiner, J., Visualization of the complex refractive index of a conductor by frustrated total internal reflection, Applied Physics Letters, Vol.89 (2006), 021908-1-3.
- Flournoy, P. A., McClure, R. W. and Wyntjes, G., White-light interferometric thickness gauge, Applied Optics, Vol. 11 (1972), pp.1907-1915.
- Iwata, T. and Mizutani, Y., Ellipsometric measurement technique for a modified Otto configuration used for observing surface-plasmon resonance, Optics Express, Vol.18 (2010), pp.14480-14487.
- Iwata, T., Wada, Y., Nishigaki, K. and Mizutani, Y., Two-dimensional thickness measurement of a dielectric thin layer on a metal by use of surface-plasmon-resonance-based ellipsometry, Proceedings of SPIE, Vol.8169 (2011), 816913-1-8.
- Kretschmann, E. Z., Die Bestimmung optischer konstanten von metallen durch anregung von oberflächenplasmaschwingungen. Zeitschrift für physik, Vol. 241 (1971), pp. 313-324.
- Macleod, H. A., Thin-film optical filters, Bristol, Hilger (1986).
- Mizutani, Y. and Iwata, T., Thin film thickness measurement by surface plasmon resonance using a modified Otto's configuration combined with ellipsometry, International Journal of Automation Technology, Vol.5 (2011), pp. 236-240.
- Otto, A., Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection, Zeitschrift für physik, Vol.216 (1968), pp.398-410.
- Placko, D., Clergot, H. and Santander, E., Physical modelling of an eddy current sensor designed for real time distance and thickness measurement in galvanization industry, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. 25 (1989), pp. 2861-2863.
- Rothenhäusler, B. and Knoll, W., Surface-plasmon microscopy, Nature, Vol.332 (1988), pp.615-617.
- Salvi, J. and Barchiesi, D., Measurement of thicknesses and optical properties of thin films from Surface Plasmon Resonance (SPR), Applied Physics A, Vol.115 (2014), pp.245-255.