

「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する
革新材料・プロセス研究」
平成20年度採択研究代表者

H23 年度 実績報告

木下 博雄

兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所 教授

コヒーレント EUV 光を用いた極微パターン構造計測技術の開発

§1. 研究実施体制

(1) 「木下」グループ

① 研究代表者：

兵庫県立大学・教授・木下博雄

② 研究項目

コヒーレントスキヤトロメトリ顕微鏡の開発

(2) 「永田」グループ

① 主たる共同研究者：

理化学研究所・専任研究員・永田豊

② 研究項目

13 nm 高次高調波発生

(3) 「藤田」グループ

① 主たる共同研究者：

大阪大学・准教授・藤田尚徳

② 研究項目

高出力コヒーレント EUV 光の発生

1) 高平均出力 fs レーザーの開発

2) 高安定・高効率高次高調波光の発生

§ 2. 研究実施内容

2-1. 木下グループ：高次高調波コヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡の開発

開発中の高次高調波コヒーレント EUV 光源を採用したコヒーレントスキャトロメトリー顕微鏡（CSM）システム全体図を示す（図 1）。スキャトロメトリー光学系の開発は計画通りに進んでおり、高次高調波発生に合わせて H23 年度 2/4 期より光源に接続しスタンドアロンでの計測を実現できた。具体的な開発項目としては、CSMチャンバや光学系の構築、高 NA 撮像のための大面積 CCD カメラの開発などである。

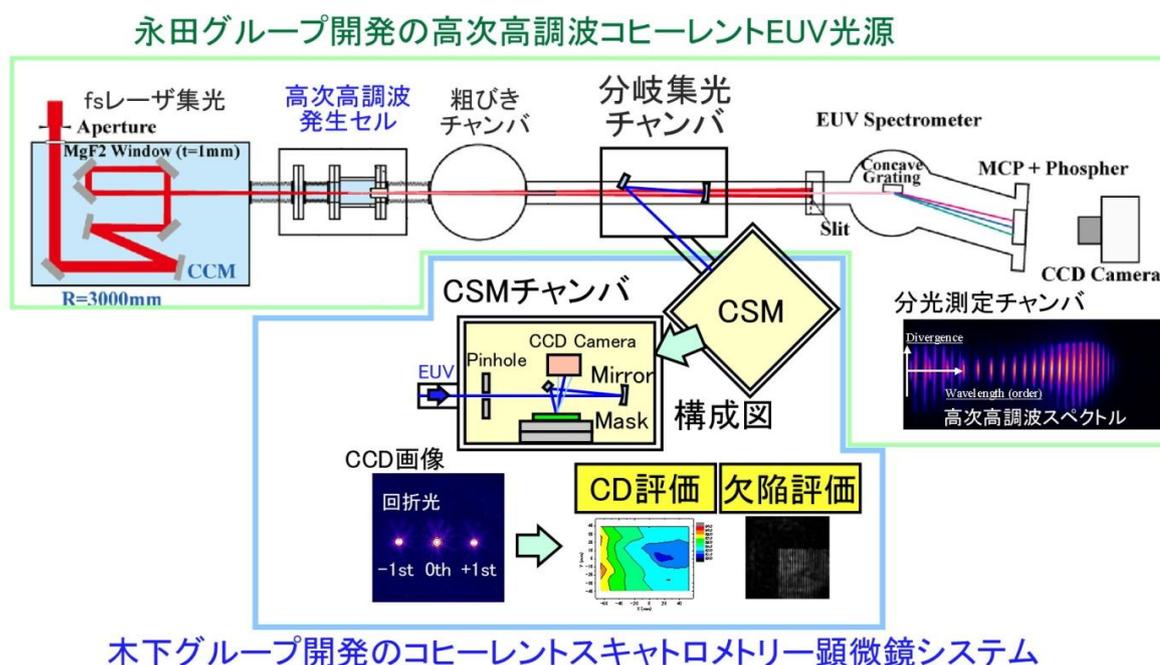


図 1. 高次高調波コヒーレント EUV 光源を採用した CSM システム。

本研究で構築した CSM 光学系の内部写真と構成図を図 2 に示す。[成果論文 5] 高次高調波発生用のガスセルの EUV 光源像を分岐集光チャンバ中の凹面鏡と平面鏡により CSM チャンバ入り口のピンホール上に投影する。光学素子はすべて Mo/Si 多層膜でコートされており、波長 13.5 nm の EUV 光を反射する。振り分けの凹面鏡は X 軸ステージ位置により、光路を分光器チャンバと CSM チャンバに切り替える。また、高次高調波 EUV 光と同軸上には波長 800 nm の桁違いに強い基本波（6W）があるため、EUV のみを切り出すため光路上に厚さ 200 nm の Zr フィルターを 2 枚挿入し、迷光を完全に防いでいる。しかし、高次光超長波をそのまま Zr フィルターに照射すると基本波の熱負荷により壊れてしまう。そこで、永田グループが開発したピンホールによる減光機構（特許出願済み、「短波長コヒーレント光源及び透過型の減光機構」，特願 2012-60637）により、2桁程度減光することで、Zr フィルターによる迷光カットを利用可能とした。

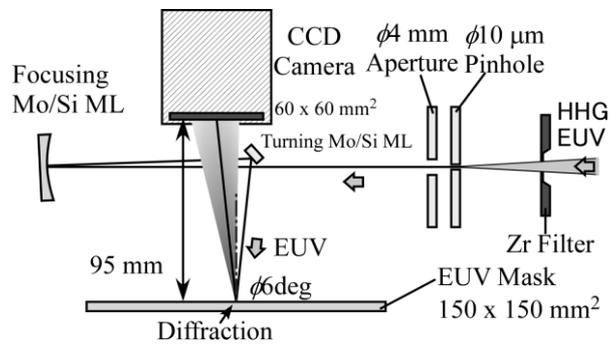
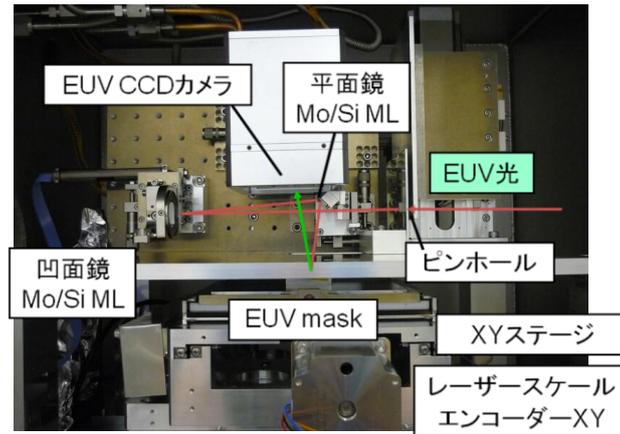


図 2. C S M光学系の内部写真と構成図.

さらに、 $\phi 10 \mu\text{m}$ ピンホールからの EUV 光を再度凹面鏡と平面鏡を利用して、EUV マスクパターン上に投影し、マスクパターンからの回折光を直接 CCD カメラで記録する。CCD カメラは新たに開発した 60 mm 角の大面積 CCD カメラを利用している。実際に記録した EUV 光の強度プロファイルを図 3 に示す。被照射マスクにはパタンのない領域を用いており、ピンホールからの回折環が放射光での測定と同等あるいはそれ以上の品質で記録されている。

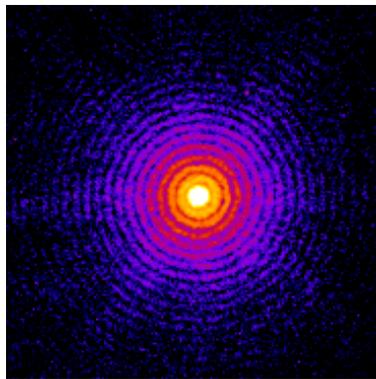


図 3. 高次高調波 EUV 光の正反射光. 強度 Log 表示.

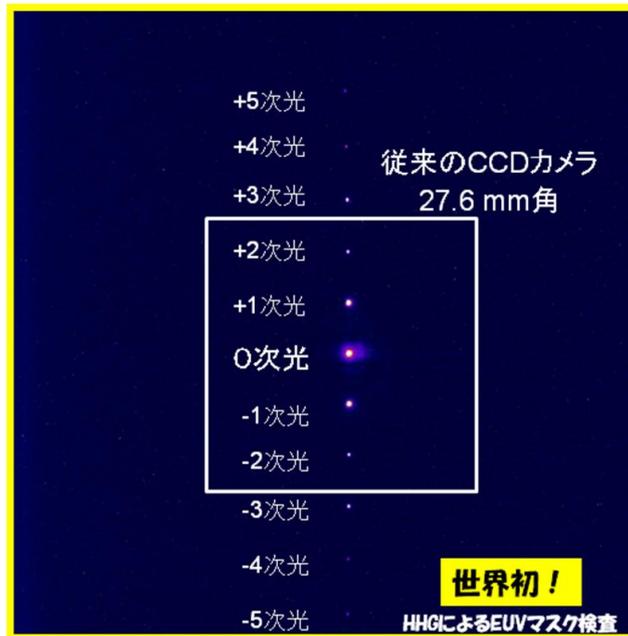


図 4. 高次高調波 CSM による EUV マスク上のラインパターン観察像.

また、図 4 には EUV マスク上の hp 32 nm 世代用のライン／スペース (L/S) パターンを観察した結果を示す。中心の反射光 (0 次光) の上下に、 ± 1 次回折光から ± 5 次回折光まで記録できた。回折光の間隔は波長 13.5 nm に対応しており、高次高調波より EUV 光のみを取り出せている。

図 4 中の白線で囲った部分が従来の市販の CCD カメラで観察される領域であり、最大 ± 2 次光まで記録できる。開発した 60 mm 角の大面積 CCD カメラでは最大 ± 5 次光まで記録可能であり、より微細な構造まで評価可能となった。60 mm 角は現状で手に入る EUV 直接検出可能な CCD チップとしては最大サイズである。図 5(a) に新規開発した CCD カメラ (左側) と、これまで使用していた CCD カメラ (右側) の写真を示す。図のように検出器面積を 4 倍以上に大面積化できた。大面積化により微細な構造が観察可能となり、10 nm 以下の世代のマスクまで CD 評価可能である。

面積が大きいため、CCD チップ全面を均一に -40°C 程度まで冷却することは非常に重要である。図 5(b) に CCD 全面で測定したノイズばらつきを示す。露光時間 1,000 秒のダークフレーム 2 枚より評価している。長時間露光する場合、ノイズ成分としては暗電流ノイズが支配的であり、暗電流ノイズのばらつきより冷却ムラを評価できる。図 5(b) の中心部と周辺部のノイズばらつきは 0.2 電子程度と小さく、全面を均一に冷却できている。

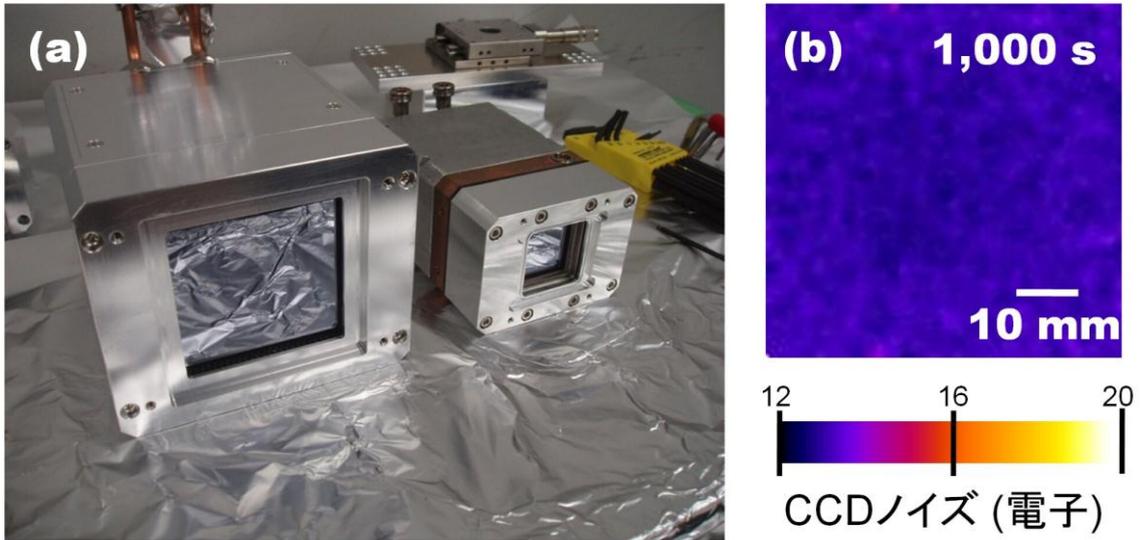


図 5. (a) 新規開発した大面積 CCD カメラ (左, 検出器面積: 60 mm 角) と従来使用していた CCD カメラ (右, 28 mm 角) の比較写真. (b) 大面積 CCD カメラのノイズ分布. 露光時間 1,000 秒のダークフレーム 2 枚より計算.

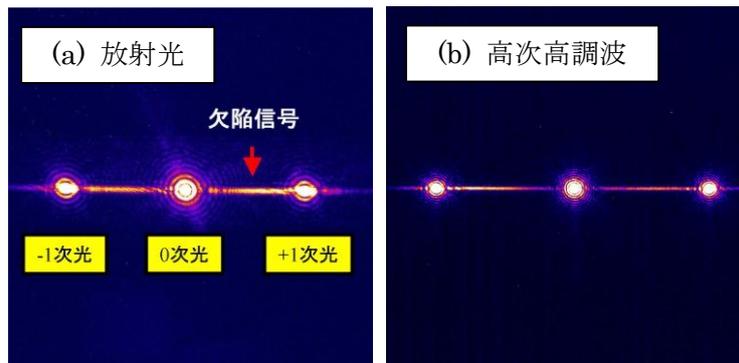


図 6. 22 nm 世代 L/S パタンの観察結果. 幅 30 nm の線欠陥からの回折光.
(a) 放射光光源と (b) 高次高調波光源での観察結果.

図 7 には L/S パタン中の線欠陥の観察結果を示す。L/S パタンの回折光と、それを貫く欠陥からの線状の回折光が記録されている。図 6(a) は従来の放射光を光源とした場合の観察結果であり、図 6(b) は高次高調波を光源とした場合である。このように、高次高調波 CSM においても、欠陥信号をはっきりと記録できた。さらに図 8 に幅 2 nm の非常に細い線欠陥の観察結果を示す。回折画像 (図 7(a) (b)) の右部分の強度プロファイルを比較した図 7(c) より、欠陥信号が明確に検出されている。放射光 CSM の検出限界は 10 nm であったが、高次高調波 CSM では検出限界を 2 nm まで大幅に向上できた。

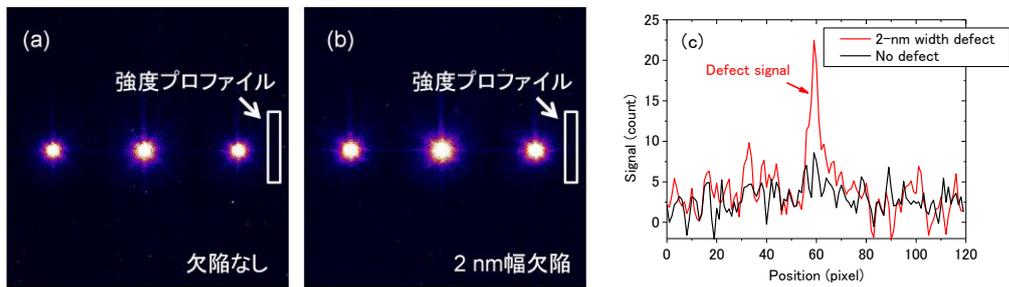


図 7. 高次高調波 CSM の欠陥観察例. 22 nm 世代 L/S パタンにおいて(a) 欠陥なし, (b) 幅 2 nm の欠陥を観察した回折画像. (c) 回折画像 (a) (b) 中の白四角領域における強度プロファイル比較結果.

このように、高次高調波を光源に採用したスタンドアロンでの EUV マスク測定を実現できた。EUV リソグラフィーでの量産が目前に迫った今、産業界から強く求められているスタンドアロンシステムを開発できたことは非常に大きな成果といえる。

2-2. 永田グループ：高次高調波 EUV 光の発生と安定化

<概要> 永田 G では、テーブルトップサイズの高出力フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーシステムを用いて高次高調波発生を行い、現在 CSM 用光源として利用している放射光のサンプル上での波長 13.5 nm のコヒーレント成分の平均出力 1.2 pW の約 1000 倍以上の出力を実現することを目的として研究を進めている。本研究では市販のレーザーシステム(中心波長 796 nm, パルス幅 32 fs, エネルギー 6mJ/pulse (6 W))を利用して高次高調波発生を行っている。本年度は高次高調波発生条件の最適化を進め He ガス 17kPa 中に励起レーザーを $10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$ で集光することで 13.5nm(59 次)高次高調波においてビーム拡がり角 0.18mrad を実現した。このときの空間強度プロファイルのガウシアンフィッティングの R^2 値は 0.99 となった。この結果は、高次高調波発生点での完全な空間コヒーレンスが得られている領域がこれまで報告されたものよりも広く、さらに完全に単一成分で構成されていることを示している。このときの出力は 50pJ/pulse, スペクトル幅は 0.1 nm であった。この高次高調波を効率良く利用するため新たに励起レーザーと高次高調波を分離するための Spatial Beam Separator を開発した。これを用いることで高次高調波の 98%の透過率と励起レーザーの 1%の透過率を実現した。さらにサンプル上でビームを転送するための EUV 光学系のスルーポットを含めて計算するとサンプル上での出力は 1nJ/pulse とすることが可能である。このシステムを用いて CSM 装置への入射を開始した。

<実施内容> CSM による EUV リソグラフィ用マスク検査装置の実用化を目的として研究を進めており、その中でコヒーレント EUV 光源の小型化、高出力化を行っている。具体的にはテーブルトップサイズの高強度フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーシステムを用いて高次高調波発生を行い、現在使用している放射光のサンプル上でのコヒーレント成分の平均出力 1.2pW の約千倍にあたる 1 nW 以上を実現することを目的として研究を進めている。

昨年度までに励起レーザーシステムと高次高調波発生システムを最適化することで 13.5 nm 高次高調波発生において He ガスおよび Ne ガス中でそれぞれビーム拡がり角として 0.21mrad, 0.17 mrad を実現した。

高次高調波発生は高次の波長変換法であり、同一条件下であればビーム拡がり角の縮小は高コヒーレンス化と同じ意味を持つ。放射光の代わりに高次高調波を用いる理由のひとつはこの空間コヒーレンスにあり高次高調波では空間的なコヒーレンスを通常のレーザーと同等とすることができるため出力全てを干渉計測に利用することも可能となる。そのため出力の絶対値は小さくとも空間的なコヒーレント成分では放射光よりも高い出力を実現可能である。また、スペクトル幅も Mo/Si 多層膜鏡の反射帯域よりも狭いため時間的なコヒーレンスも放射光よりも優れている。そのため CSM においてもより高い S/N 比を実現することが可能である。

今年度は高次高調波を実際に CSM 装置に入射することを念頭において、CSM 装置への

入射に適した高次高調波発生条件最適化、高次高調波に対して高いスループットをもちかつ励起レーザーを低減するための新しい機構の開発、高次高調波の出力の計測、励起レーザーの空間的なビームロック(ビーム揺らぎの低減)をおこなった。高次高調波発生システムを図 8 に示す。

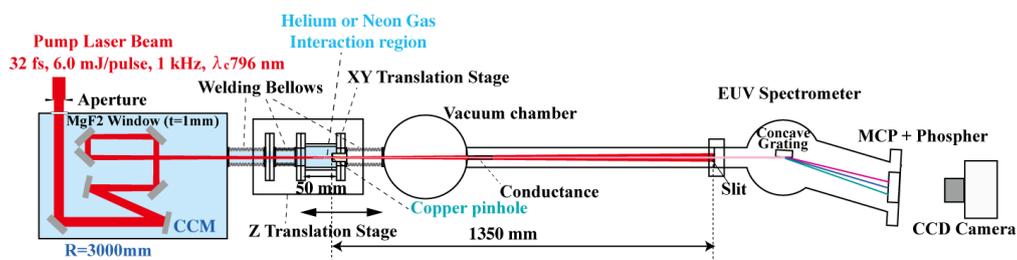


図 8. 高次高調波発生システムの概略図

励起レーザーシステム自体の仕様(中心波長 796 nm においてパルス幅 32 fs, 平均出力 6W (6 mJ/pulse, 1 kHz))に変更はないが本年度末に安定化向上のためシード光発振器を最新のモードロック Ti:Sapphire レーザー発振器に変更した。高次高調波は高強度の励起レーザー光と同軸上に伝搬する。このレーザー強度は一般的には EUV 光用のオプティクス耐光強度よりも 1 桁以上高い。そのため高次高調波を応用研究に用いる上では励起レーザー光の低減が必須である。当初の研究計画では励起レーザーの低減には斜入射のビームセパレータを使用する予定であったが昨年度までの研究成果から応用研究に適した新しいビームセパレータが実現可能なことがわかった。このビームセパレータは励起レーザー光と高次高調波のビーム拡がり角の差異を利用するため高次高調波のビーム拡がり角を小さくすることは重要な課題であった。こまかな説明は省くが高次高調波の発生にはいくつかの電子軌道が寄与することが分かっており、それぞれに位相整合条件が異なるため、またビーム拡がり角なども異なる。いずれにしても励起レーザーと同軸に伝搬するため波面が異なる成分は干渉を起こしてしまう。そのため、可能な限り単一成分での高次高調波発生を実現する必要がある。昨年度までは Ne ガスを媒質とすることで最も小さなビーム拡がり角を実現したが主成分の他に弱いながらも明らかに他の成分も混在していた。これは Ne 原子のレーザーに対するトンネルイオン化しきい値が低いことが原因となっており、発生条件がかなりシビアであった。そこでよりトンネルイオン化しきい値の高い He ガスを媒質とした時の発生条件の最適化を進めた。その結果、He ガスを媒質とした時においてビーム拡がり角 0.18 mrad を実現した。このときの高次高調波スペクトルの圧力依存性を図 9 に、空間強度分布を図 10 に示す。

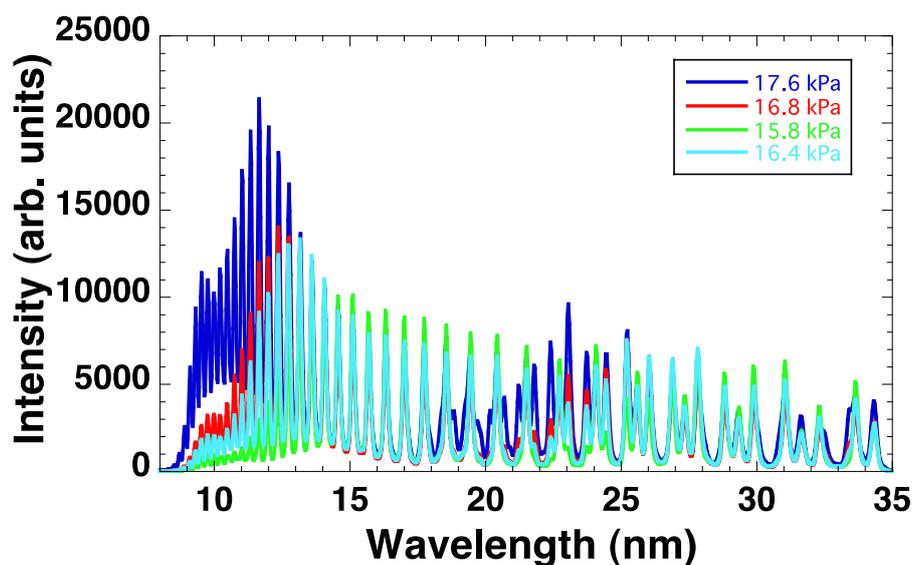


図 9. 高次高調波スペクトルの圧力依存性

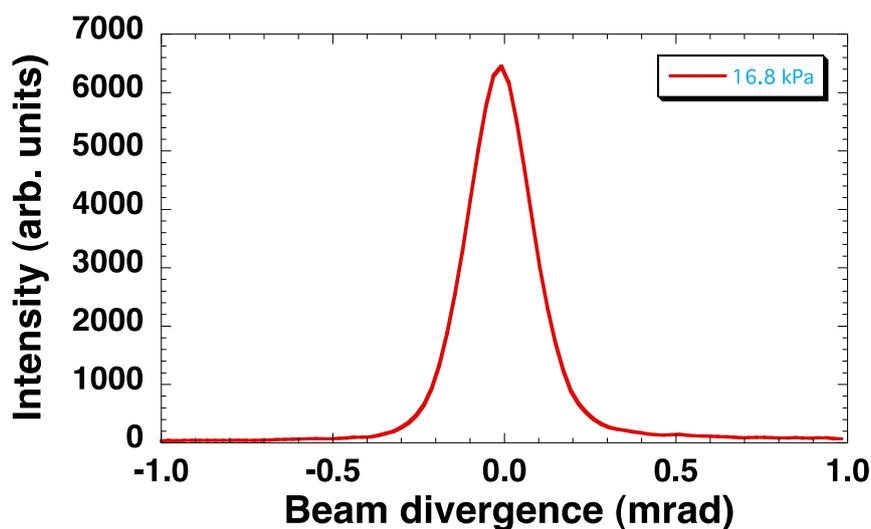


図 10. 59 次高次高調波の空間強度分布

このときの空間強度プロファイルのガウシアンフィッティングの R^2 値は 0.99 となりほぼ完全に単一成分のみと見なすことができた。この値から逆算すると高次高調波の発生点における空間的に完全にコヒーレントな領域の直径は $24\mu\text{m}$ 以上であることがわかった。このとき励起レーザーのビーム拡がり角は 4.0 mrad である。このビーム拡がり角の差異を利用した新しいビームセパレータを開発した。システムは非常に単純で高次高調波の光軸上に高次高調波のビームサイズと同程度のピンホールを設置することで高次高調波に対する高いスループットを確保した上で励起レーザー光を 1%程度まで低減することができる。この新しい Spatial Beam Separator の利点は非常に多い。まず、高次高調波に対しては単にピンホールを通すだけなので波長依存性、偏光依存性がなく、波面も光路も変化しない。

また、透過率 99%以上も可能である。また、励起レーザーに対しても波長依存性、偏光依存性は無く、損傷しきい値も非常に高い。光路が変わらないことはアライメントを容易にする上、およその調整を励起レーザー等で行うことも可能である。また、その他にも重要な利点がある。それは励起レーザー光がこのピンホールで大きく回折されるため実効的にこのピンホールの位置が励起レーザー光のビームウエスト位置と見なせることである。高次高調波は回折の影響を受けないためこの後に集光した場合は励起レーザーと高次高調波の焦点位置が異なる。このことは励起レーザーの低減をより容易にすることが可能なことを示している。この機構は非常に安価かつ簡便であるにもかかわらず有用性が高い。そのため、この **Spatial Beam Separator** について特許を出願した。今回の実験では直径 300 μm のピンホールを高次高調波の出射側のピンホールから 60cm の距離に設置したがこの条件で計算上 13.5nm 高次高調波の透過率は約 98%で励起レーザーの透過率は 1%となる。そのためこのピンホールより下流側であれば全ての EUV 光学素子を損傷なく使用することが可能となった。

つぎに 13.5nm 高次高調波の出力の計測をおこなった。今回は **Spatial Beam Separator** の下流側に Zr フィルターをおいてさらに下流側にフォトディテクターをおいて出力を計測した。この条件では 13.5nm 高次高調波以外の波長成分がふくまれるため同一の条件でスペクトルを計測し、ディテクターの波長感度補正を行った上で 13.5nm の成分の比率を計算することで出力を求めた。その結果、ビーム拡がり角 0.18mrad のときの出力は 50nW (50pJ/pulse)であることがわかった。また 2 次回折光からスペクトル幅を見積もったところ 0.1 nm となった。この値は Mo/Si 多層膜鏡の反射帯域より十分狭く高次高調波の時間的なコヒーレンスが放射光と比較して優れていることを示している。また、ビーム拡がり角にこだわらずに 13.5 nm 高次高調波の出力のみを増加させた条件での出力は 1 μW 以上となることがわかった。CSM 装置に設置したサンプルまでの光学素子を含めたビーム転送のスループットは CSM の入射側ピンホールを除けば数%程度であり 0.18 mrad の高調波を利用した時でもサンプル上での出力として目標の 1nW を実現することも可能であることがわかった。この条件で CSM 装置への入射実験を開始した。高次高調波発生セルから CSM までの概略を図 11 に示す。

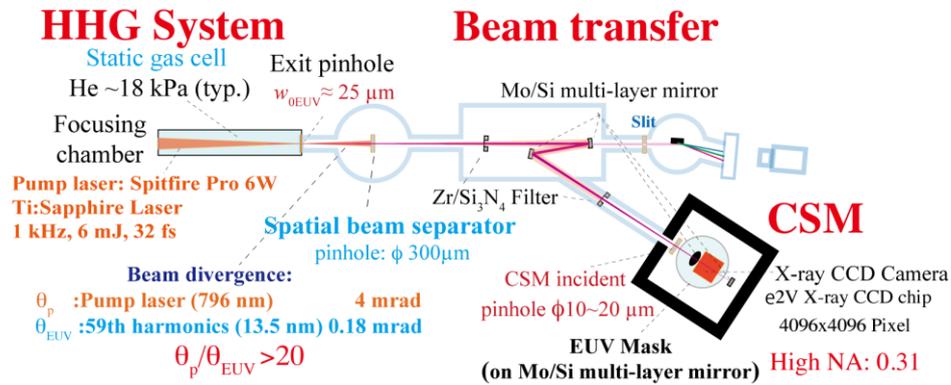


図 11. 高次高調波を用いた CSM 装置の概略図

このとき CSM 装置の入射側ピンホール上でのビーム揺らぎがピンホールの直径と比較して大きいことがわかった。この揺らぎは励起レーザーのショットごとのものではなく数秒以上の非常にゆっくりとした周期であるがアライメントを困難にするうえ、光の利用効率が低下するため計測時間が増加してしまう原因となった。ビームの揺らぎの詳しい原因は不明であるがその一因として励起レーザーの空間的な揺らぎも影響していると考えられる。そこで励起レーザーシステムにビームロック装置を導入してビーム揺らぎの低減を図った。高次高調波発生時に使用するにはまだ課題が残っているが光学定盤上で励起レーザービームロックを行ったところ高次高調波発生と同じ凹面鏡を使用したときに焦点位置でのビーム揺らぎを rms 値で $1 \mu\text{m}$ 以下、角度ゆらぎを $1 \mu\text{rad}$ 以下とすることに成功した。今回は 13.5 nm 高次高調波の利用を目的として実験をおこなったが本方式で 9 nm までのコヒーレント光源を各種応用研究に提供可能なシステムを構築することに成功した。

2-3. 藤田グループ：高出力コヒーレント EUV 光の発生

超短パルスレーザーの最適化（高出力励起光・超短パルス種光・OPCPA 等）を実施した。

① OPCPA 励起光の高出力化

kW 級 YAG レーザーの高出力高効率波長変換を実施した。SBS 位相共役鏡による励起光パルスの高ビーム品質化、短パルス化を実施した。図 12 に、SBS 位相共役ミラーを使った場合のパルス波形を示す。SBS 位相共役鏡にテーラードパルスを導入することにより、パルス幅 1.75ns（FWHM）までの短パルス化に成功した。これまでは、パルス幅 3-10ns であったが、これによりピーク強度が高められることになり、OPCPA の利得と効率の改善が期待できる。

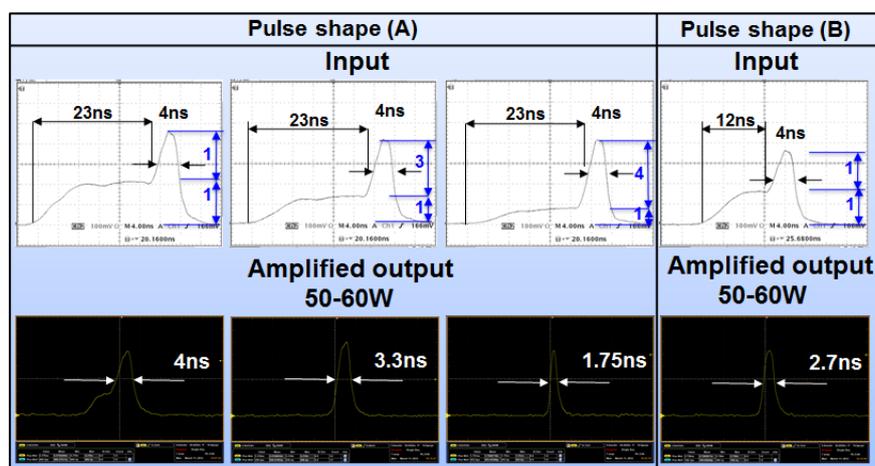


図 12 SBS 位相共役鏡によるパルス圧縮

② OPCPA 増幅・パルス圧縮の最適化

種光源である分散補償モード同期ファイバー発振器の最適化を実施し、図 13 に示すように 29.4fs パルスを達成した（原著論文 5）。3 段のステージから構成される OPCPA 増幅列を構築し、シード光の増幅を行った。図 14 に示すように、小信号利得として最大 730000 倍が得られた。増幅後の 1 パルスのエネルギーは、発振器出力が小さいために、最大 0.2mJ（平均 0.8W）とまだ大きくない。シード光出力の増強や OPCPA 増幅段を追加することで 50W クラスまでの増幅が可能となる。

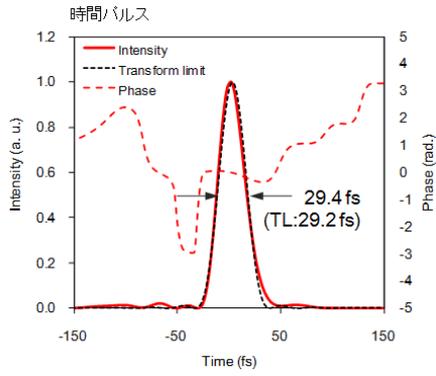


図 13 種光源のパルス波形

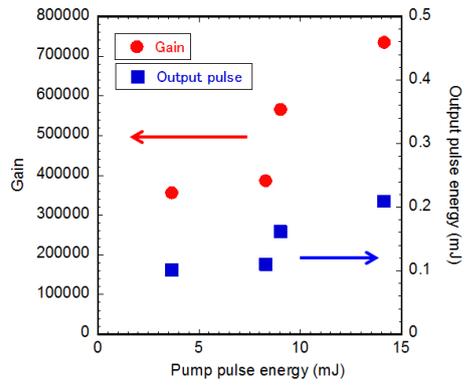


図 14 OPCPA 増幅結果

③ 高次高調波発生実験の開始

高繰り返し超短パルスレーザーシステムを用いた高次高調波発生実験の準備を進めている。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

1. Tetsuo Harada¹, Masato Nakasuji¹, Teruhiko Kimura¹, Yutaka Nagata², Takeo Watanabe¹, and Hiroo Kinoshita¹ (1 Univ. of Hyogo, 2 RIKEN), “The coherent EUV scatterometry microscope for actinic mask inspection and metrology”, Proc. SPIE **8081** (2011) 80810K, DOI: 10.1117/12.896576.
2. Tetsuo Harada¹, Masato Nakasuji¹, Masaki Tada¹, Yutaka Nagata², Takeo Watanabe¹, and Hiroo Kinoshita¹ (1 Univ. of Hyogo, 2 RIKEN), “Critical Dimension Measurement of an Extreme-Ultraviolet Mask Utilizing Coherent Extreme-Ultraviolet Scatterometry Microscope at NewSUBARU”, Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 06GB03, DOI: 10.1143/JJAP.50.06GB03.
3. Tetsuo Harada¹, Masato Nakasuji¹, Teruhiko Kimura¹, Takeo Watanabe¹, Hiroo Kinoshita¹, Yutaka Nagata² (1 Univ. of Hyogo, 2 RIKEN), “Imaging of extreme-ultraviolet mask patterns using coherent extreme-ultraviolet scatterometry microscope based on coherent diffraction imaging,” J. Vac. Sci. Technol. B **29** (2011) 06F503, DOI: 10.1116/1.3657525.
4. H. Yoshida¹, K. Tsubakimoto¹, Y. Fujimoto¹, K. Mikami¹, H. Fujita¹, N. Miyanaga¹, H. Nozawa¹, H. Yagi¹, T. Yanagitani¹, Y. Nagata², and H. Kinoshita³ (1 Osaka Univ., 2 RIKEN, 3 Univ. of Hyogo), “Optical properties and Faraday effect of ceramic terbium gallium garnet for a room temperature Faraday rotator”, Opt. Exp. Vol. **19**, No. 16 (2011) pp15181-15187, DOI: 10.1109/CLEOE.2011.5942840.
5. Takashi Kurita, Hidetsugu Yoshida, Hiroaki Furuse, Toshiyuki Kawashima and Noriaki Miyanaga, “Dispersion compensation in an Yb-doped fiber oscillator for generating transform-limited, wing-free pulses”, Optics Express, Vol. **19**, No. 25, pp.25199-25205, 2011, DOI: 10.1364/OE.19.025199.
6. Masato Nakasuji¹, Akifumi Tokimasa¹, Tetsuo Harada¹, Yutaka Nagata², Takeo Watanabe¹, Katsumi Midorikawa², Hiroo Kinoshita¹ (1 Univ. of Hyogo, 2 RIKEN), “Development of Coherent Extreme-Ultraviolet Scatterometry Microscope with High-Order Harmonic Generation Source for Extreme-Ultraviolet,” Jpn. J. Appl. Phys. (2012) Accepted.

(3-4) 知財出願

- ① 平成 23 年度特許出願件数(国内 2件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 4件)