

极紫外光源用大口径 Mo/Si 多层膜厚度控制与热稳定性研究

刘翔月¹, 张哲^{1*}, 蒋励¹, 宋洪萱², 姚殿祥¹, 黄思怡¹, 徐文杰³, 霍同林³, 周洪军³, 齐润泽¹,
黄秋实^{1**}, 张众¹, 王占山¹

¹同济大学物理科学与工程学院精密光学工程技术研究所, 上海 200092;

²上海大学理学院, 上海 200444;

³中国科学技术大学国家同步辐射实验室, 安徽 合肥 230029

摘要 Mo/Si 多层膜是 13.5 nm 极紫外波段理想的反射镜膜系, 它与极紫外光源的结合使得极紫外光刻成为了目前最先进的制造手段之一。极紫外光源的实际应用对 Mo/Si 多层膜提出了高反射率、高热稳定性、抗辐照损伤、大口径等诸多要求。针对极紫外光源用 Mo/Si 多层膜面临的膜厚梯度控制和高温环境问题, 利用掩模板辅助法对大口径曲面基底上不同位置处的多层膜膜厚进行修正; 选择 C 作为扩散阻隔层材料, 对磁控溅射法制备的 Mo/Si、Mo/Si/C 和 Mo/C/Si/C 三种多层膜在 300 °C 高温应用环境下的热稳定性展开了研究。研究表明: 通过掩模板辅助的方式能够将 300 mm 口径曲面基底上不同位置处的 Mo/Si 多层膜膜厚控制在预期厚度的 $\pm 0.45\%$ 以内, 基底上不同位置处 Mo/Si 多层膜的膜层结构和表面粗糙度基本相同; 引入 C 扩散阻隔层后, 经过 300 °C 退火, Mo/Si 多层膜的反射率损失从 9.0% 减少为 1.8%, 说明 C 的引入能够有效减少高温对多层膜微结构的破坏和对光学性能的影响, 提高了多层膜的热稳定性。

关键词 激光光学; 极紫外光源; Mo/Si 多层膜; 磁控溅射; 膜厚控制; 热稳定性

中图分类号 O434 **文献标志码** A

DOI: 10.3788/CJL231540

1 引言

极紫外光刻技术(EUVL)是目前半导体制造领域中最先进的技术^[1], 其中极紫外光源是 EUVL 的核心之一。目前, 用来产生极紫外光的光源主要有同步辐射光源、高次谐波光源、放电等离子体(DPP)和激光等离子体(LPP)等^[2-3]。在这些光源中, LPP 光源具备输出功率高且稳定的优势^[4], 能够满足利用 EUVL 进行集成电路量产的需求。目前 ASML 作为全球唯一的 EUVL 生产商, 其生产的 NXE3600D 光刻机系统^[5]搭载了功率为 250 W 的 LPP 光源。LPP 光源的工作原理是利用高能激光轰击金属靶材产生等离子体, 同时产生极紫外(EUV)波段的辐射^[6], 再通过 Mo/Si 多层膜将 EUV 辐照收集起来进而传输至照明及投影系统。Mo/Si 多层膜是光刻机的极紫外光源中必不可少关键元件, 目前国外研究小组已制备出近正入射下反射率接近 70% 的 Mo/Si 多层膜^[7-8]。对于极紫外光源用大口径曲面反射镜, 光线的入射角沿其曲面不断变化, 为了使多层膜的反射峰位与光线的入射角相匹配, 其

表面镀制的周期性 Mo/Si 多层膜膜厚必须沿其表面呈横向梯度分布以保证较高的 EUV 反射率。同时, 由于极紫外光源用反射镜靠近光源, 受到的辐照强度大, 多层膜长期处于高热负载使用环境下, 薄膜内部温度升高会产生钼硅化合物, 多层膜光学性能下降。因此, 镀制在极紫外光源用大口径曲面反射镜表面上的 Mo/Si 多层膜在热稳定性方面也面临较高的要求^[9]。

对于多层膜周期厚度的横向梯度控制, 常见的膜厚修正方法为掩模板法和变速掠靶法。1999 年, Morawe 等^[10]为了在 240 mm 长基底上镀制周期厚度为 3~6 nm 的一维横向梯度膜, 对靶材沿基底长度方向移动的速率进行修正, 将基底表面的膜厚误差控制在设计值的 1% 内。2009 年, Sassolas 等^[11]利用与基底面形相似的凹面式掩模板, 采用离子束溅射法在口径为 500 mm、矢高差为 100 mm 的基底表面上将膜厚误差控制到设计值的 0.7% 内。2015 年, Yu 等^[12]通过调控基底经过溅射区域的速率, 对直流磁控溅射法制备的球面基底上的 Mo/Si 多层膜进行膜厚梯度控制, 并通过行星掠靶^[13]的镀膜机运转方式及基因算法的一次

收稿日期: 2023-12-19; 修回日期: 2024-02-29; 录用日期: 2024-03-06; 网络首发日期: 2024-03-13

基金项目: 国家自然科学基金(12204353, 12075170, U2030111)

通信作者: *zzight@tongji.edu.cn; **huangqs@tongji.edu.cn

次迭代,将整个元件表面膜层的膜厚误差控制在设计值的 0.2% 内。在同济大学精密光学工程技术研究所之前的研究中,研究者利用掩模板对多层膜的膜厚进行修正,采用磁控溅射法将 200 mm 口径弯曲基底表面的膜厚误差控制在设计值的 0.3% 内^[14]。综上所述,利用掩模板法进行膜厚修正的主要优点在于模型简单,不用对溅射速率分布进行复杂的假设和定义^[15-16]。而相比于掩模板法,变速掠靶法进行膜厚的高精度控制时,不仅需要建立精确的磁控溅射镀膜膜厚分布控制模型,还需要根据镀膜机的不同运行方式选择不同的速度修正方法。因此,本文利用掩模板法对多层膜膜厚进行高精度调控。在提高 Mo/Si 多层膜反射镜热稳定性的研究中,常见的方法为材料置换法和添加阻隔层法。2006 年, Yulin 等^[17]利用磁控溅射法制备了 Mo/C/Si/C 多层膜,峰值反射率为 59.6%,在 500 °C、100 h 条件下退火后仍保持 58.5% 的 EUV 反射率,中心波长仅有 0.16 nm 的漂移。2013 年, Bosgra 等^[18]将材料置换法与添加阻隔层法结合,利用电子束蒸发法制备了 Mo₂C/C/Si/C 多层膜,在 600 °C 下 Mo₂C/C/Si/C 多层膜具有优异的热稳定性。国内也在热稳定性方面开展了相关研究。喻波^[19]使用 BN 材料作为阻隔层制备了 Mo/BN/Si/BN 膜系,在 500 °C、100 h 条件下,周期厚度变化小于 0.10 nm,与 Mo/Si 膜系在 350 °C、12 h 条件下的周期厚度变化(0.95 nm)相比, Mo/BN/Si/BN 膜系具有优异的热稳定性。同济大学精密光学工程技术研究所针对 Mo/Si 多层膜开展了 Mo 层结晶态与热稳定性的相关研究,结果表明:在退火前, Mo 层结晶的多层膜具有更好的界面结构和更高的 EUV 反射率;在 300 °C 下退火后, Mo 层结晶的多层膜有良好的热稳定性;但是在 400 °C 下退火后, Mo 层为准非晶态的多层膜,具有更好的热稳定性^[20]。为进一步提高 Mo/Si 多层膜在高温环境下的热稳定性,本文开展了 C 扩散阻隔层与热稳定性的相关研究。

同济大学精密光学工程技术研究所在极紫外和 X 射线多层膜制备领域建立了较为完整的技术体系,达

到了国际先进水平^[21]。本文以大口径 Mo/Si 多层膜为研究对象,在大尺寸曲面基底上制备了周期厚度呈横向梯度分布的 Mo/Si 多层膜,采用掩模板法对其表面厚度分布进行了精密调控,成功将 300 mm 口径曲面基底上不同位置处的 Mo/Si 多层膜膜厚控制在预期厚度的 ±0.45% 以内,且 300 mm 口径范围内不同位置处的多层膜成膜质量基本一致。通过添加 C 阻隔层,有效提高了 Mo/Si 多层膜的热稳定性,所制备的 Mo/C/Si/C 多层膜在 300 °C 下退火后反射率仅下降 1.8%。

2 实验设计

2.1 多层膜的制备

本文采用直流磁控溅射技术在超抛光硅片上制备了两组样品,分为膜厚修正实验样品和退火实验样品。在膜厚修正实验中,样品目标周期厚度为 6.96~7.31 nm, Mo 层厚度与周期厚度比值约为 0.40,周期对数为 50。退火实验样品分别为 Mo/Si 多层膜、Mo/Si/C 多层膜和 Mo/C/Si/C 多层膜,周期对数均为 50,三种退火样品的多层膜膜系如表 1 所示,其中 d_{Mo} 为多层膜样品一个周期厚度内 Mo 层的厚度, d_c 为多层膜样品一个周期厚度内 C 层的厚度, d_{Si} 为多层膜样品一个周期厚度内 Si 层的厚度, d_{c1} 为 Si-on-Mo 界面处 C 层的厚度, d_{c2} 为 Mo-on-Si 界面处 C 层的厚度。两组样品在制备时,均采用分压为 1 mTorr (1 Torr=133.322 Pa)、纯度(体积分数)为 99.999% 的氩气作为工作气体,本底真空均为 6.4×10^{-5} Pa。图 1(a) 为实验使用的磁控溅射镀膜设备实物图,该镀膜机采用自转加公转的行星运转方式进行镀制。退火实验均在真空腔内进行,本底真空为 2×10^{-4} Pa,图 1(b) 为本文所用的退火系

表 1 退火样品的多层膜膜系

Table 1 Multilayer film systems of annealed samples

Sample	d_{Mo} / nm	d_{c1} / nm	d_{Si} / nm	d_{c2} / nm
Mo/Si	2.80	—	4.19	—
Mo/Si/C	2.60	—	3.88	0.48
Mo/C/Si/C	2.20	0.42	3.84	0.51

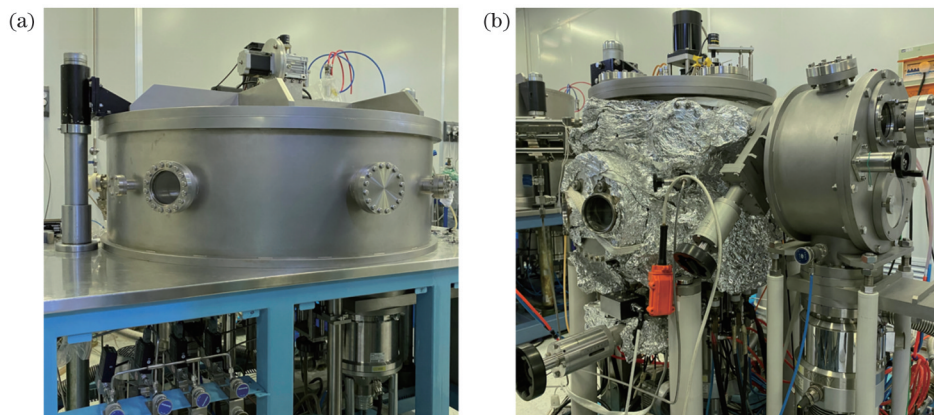


图 1 实验设备。(a)镀膜设备;(b)退火设备

Fig. 1 Experimental equipments. (a) Sputtering equipment; (b) annealing equipment

统实物图。

2.2 厚度标定方法

由于无法直接测量以及表征大尺寸曲面基底上多层膜的膜厚和成膜质量,需要一个代基底^[22]来模拟 300 mm 口径曲面基底的面形,代基底示意图如图 2 所示。为了尽可能准确地再现基底的真实曲率,在镜面中心到边缘径向方向上均匀地选择了 12

个点,在 12 个点处附着的超抛光硅片上进行 Mo/Si 多层膜的制备。在多层膜的制备过程中,基底一直保持着 400 r/min 的高速自转,以此保证基底上相同半径处多层膜结构的一致性。样品制备结束后通过对 12 个点处的 Mo/Si 多层膜进行表征分析,可以评估整个 300 mm 口径曲面基底上多层膜的成膜质量。

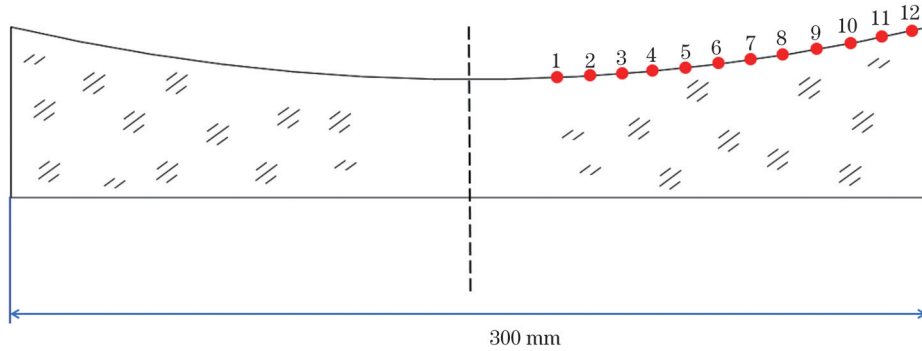


图 2 代基底示意图

Fig. 2 Schematic of substituted substrate

本文使用掩模板来控制多层膜在基底上不同位置处的厚度,方法如下:将掩模板固定在以行星运动方式运动的公转组件上,因为样品在镀制时保持高速自转,所以掩模板与基底共轴高速相对运动(图 3),于是,通过控制掩模板上不同半径处的遮挡比例就可以控制样品架上不同半径处的基底的膜层沉积厚度。

射实验室(NSRL)光束线光谱辐射标准与计量站(U26)上开展。

3 结果与分析

3.1 300 mm 口径曲面基底上不同位置处的多层膜结构

图 4 为在 Mo/Si 多层膜样品镀制过程中使用掩模板进行周期厚度修正后的 12 个标定件的 XRR 测试结果,其中 X 值为代基底上标定样品中心与代基底中心之间的距离。可以看出,各样品的 XRR 测试曲线中的布拉格峰宽较窄,多层膜样品的厚度规整性良好,说明在整个 300 mm 口径曲面基底上不同位置处多层膜样品的厚度规整性良好,且膜层结构基本一致。

从标定件中心到边缘处方向,样品布拉格峰的峰位逐渐左移。这是由于在使用掩模板进行多层膜的膜厚修正后,标定件上样品的周期厚度从标定件中心到边缘处方向越来越大,满足目标设计要求。

3.2 300 mm 口径曲面基底上不同位置处多层膜的表面形貌

为了获得整个曲面基底上不同位置处 Mo/Si 多层膜的表面粗糙度,依次对 $X=32.5$ mm(样品 1)、 $X=72.5$ mm(样品 5)、 $X=112.5$ mm(样品 9)以及 $X=142.5$ mm(样品 12)处标定件上的 Mo/Si 多层膜样品进行了 AFM 测试,扫描区域尺寸为 $1\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$,测试结果如图 5 所示。可以看到,四个样品的表面十分光滑,且形貌基本一样,4 个表面粗糙度(σ)分别为 0.128、0.123、0.124、0.118 nm,说明在整个标定范围内样品的表面粗糙度基本一致。

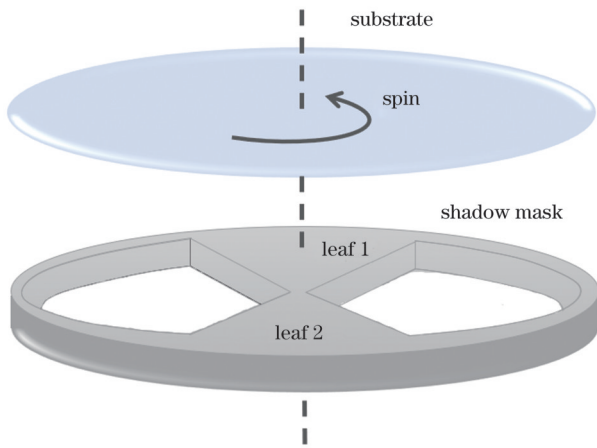


图 3 基底与掩模板的几何关系示意图

Fig. 3 Schematic of geometric relationship between substrate and shadow mask

2.3 表征与测试

利用 X 射线衍射仪对多层膜进行掠入射 X 射线反射率(XRR)测试,通过 X 射线反射率曲线拟合得到多层膜的膜层结构和周期厚度等信息;利用原子力显微镜(AFM)对多层膜的表面形貌进行观察;用透射电子显微镜(TEM)对多层膜样品内部的微结构进行测试,获得周期厚度、界面处混合层厚度以及各个膜层厚度等信息;多层膜样品的 EUV 反射率测试在国家同步辐

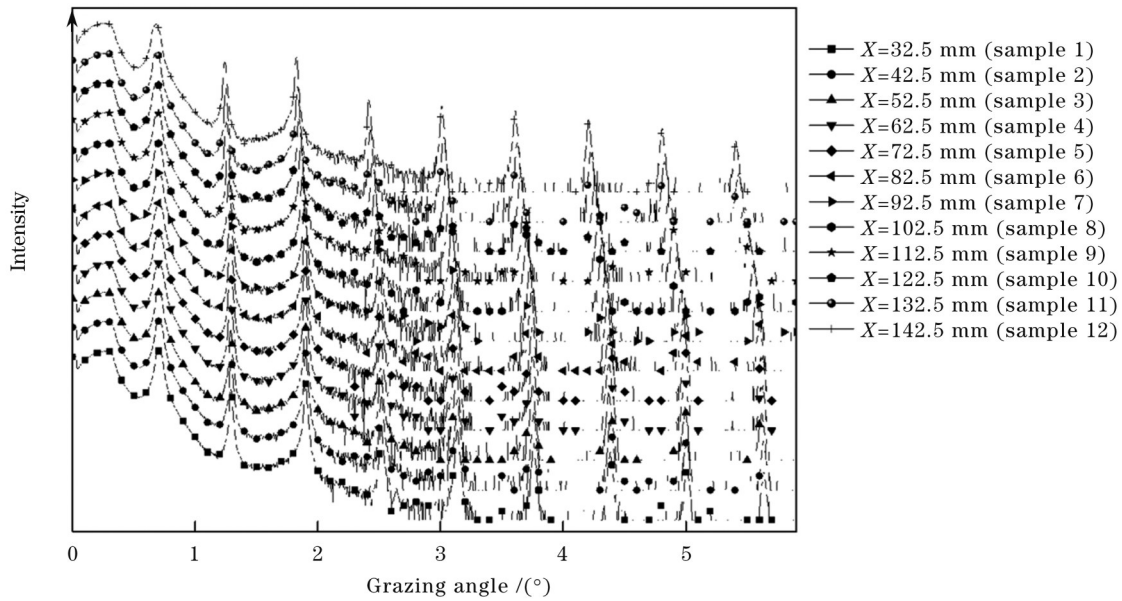


图 4 使用掩模板进行膜厚修正后代基底上不同位置处多层膜的 XRR 测试结果

Fig. 4 XRR measurement results of multilayer films at different positions on substituted substrate after film thickness correction using shadow mask

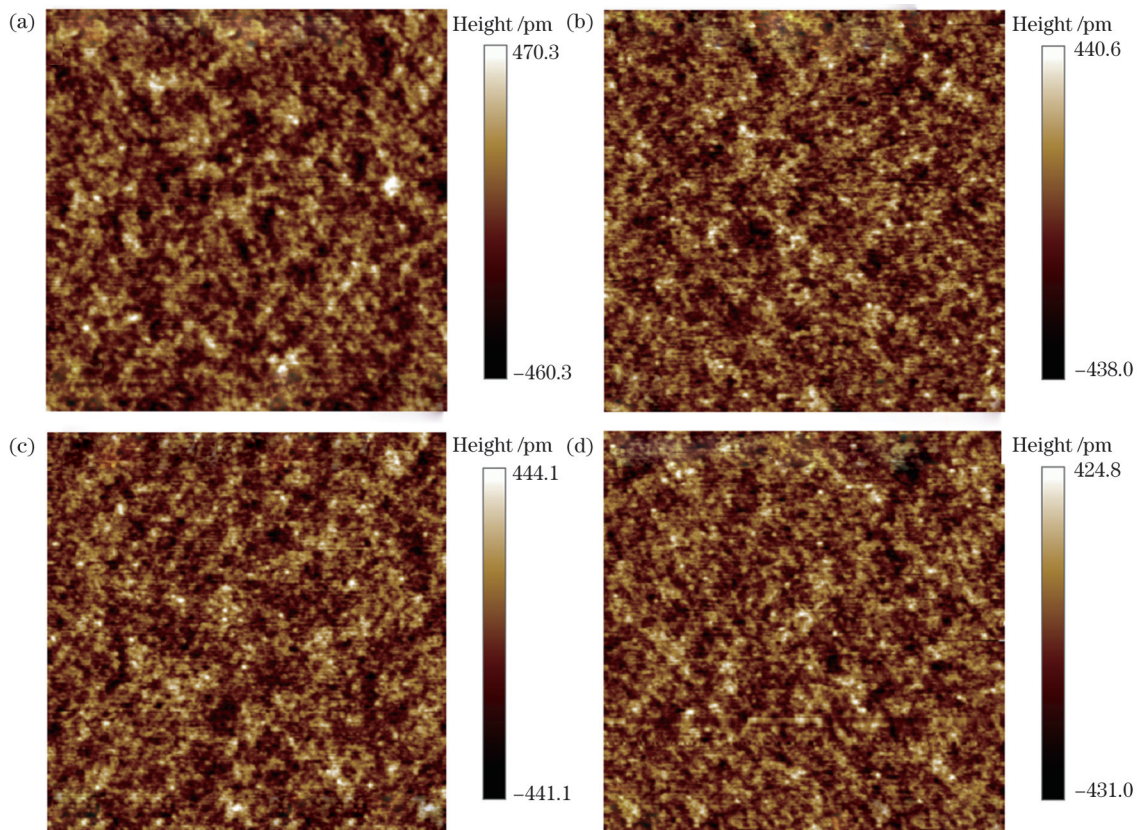


图 5 300 mm 口径曲面基底上不同位置处样品的 AFM 图。(a)X=32.5 mm 处(样品 1);(b)X=72.5 mm 处(样品 5);
(c)X=112.5 mm 处(样品 9);(d)X=142.5 mm 处(样品 12)

Fig. 5 AFM images of samples at different positions on curved substrate with 300 mm diameter. (a) X = 32.5 mm (sample 1);
(b) X = 72.5 mm (sample 5); (c) X = 112.5 mm (sample 9); (d) X = 142.5 mm (sample 12)

3.3 300 mm 口径曲面基底上 Mo/Si 多层膜膜厚横向梯度的修正结果

对代基底上 12 个标定样品进行 XRR 测试后,使用该衍射仪的拟合软件根据测试图中每条曲线的布

拉格峰的位置计算出每个样品上多层膜的周期厚度,得到整个代基底上的周期厚度分布,图 6 为 300 mm 口径曲面基底上不同位置处样品周期厚度的归一化结果。目前,我们利用掩模板辅助的方式

能够将 300 mm 口径曲面基底上不同位置处的 Mo/Si 多层膜膜厚控制在预期厚度的 $\pm 0.45\%$ 以内,使反射镜上各点处的多层膜膜厚尽可能地匹配该点处光线的入射角度,有效保证了反射镜上各点的反射率。

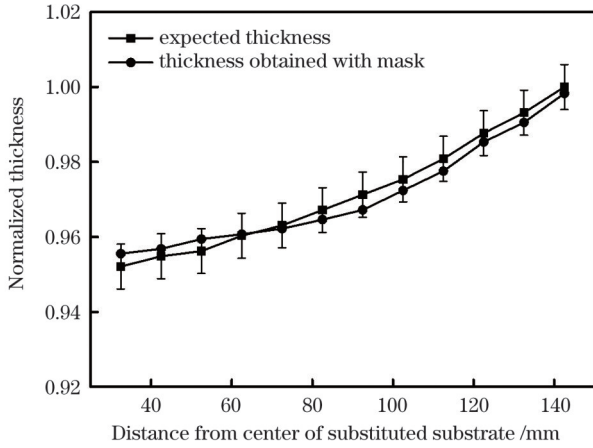


图 6 300 mm 口径曲面基底上不同位置处样品周期厚度的归一化结果

Fig. 6 Normalized results for periodic thicknesses of samples at different positions on curved substrate with 300 mm diameter

3.4 C 扩散阻隔层对多层膜样品退火后的结构性能的影响

在退火研究中,Mo/Si、Mo/Si/C 和 Mo/C/Si/C 三个膜系在 300 °C 下退火 2 h。选择 300 °C 温度的原因是以往的研究^[23]表明,在 300 °C 下 Mo/Si 多层膜结构发生明显变化。为研究高温环境对 Mo/Si、Mo/Si/C 和 Mo/C/Si/C 三种膜层结构的影响,对退火前后的样品进行了 XRR 测试,并对比退火前后的测试结果,如图 7 所示。从图 7(a)可以看出,Mo/Si 多层膜样品在退火后布拉格峰峰位明显向大角度方向偏移,高级次峰强度大幅度下降,并且二级布拉格峰强度出现明显下降。这说明退火后 Mo/Si 多层膜样品的周期厚度明显减小,Mo 层有效厚度与周期厚度比发生改变。从图 7(b)可以看出,Mo/Si/C 多层膜样品在退火后同样出现布拉格峰的大角度偏移现象,但偏移量小于 Mo/Si 多层膜,这说明 Mo/Si/C 多层膜样品退火后的周期厚度变化量小于 Mo/Si 多层膜。从图 7(c)可以看出,Mo/C/Si/C 多层膜在退火后布拉格峰峰位向小角度方向有轻微的偏移,除三级布拉格峰外,其他布拉格峰峰高与峰宽几乎没有变化。说明 Mo/C/Si/C 多层膜在 300 °C、2 h 条件下退火后周期厚度与膜层结构基本没有发生改变。

根据布拉格峰峰位,可计算出 Mo/Si、Mo/Si/C 和

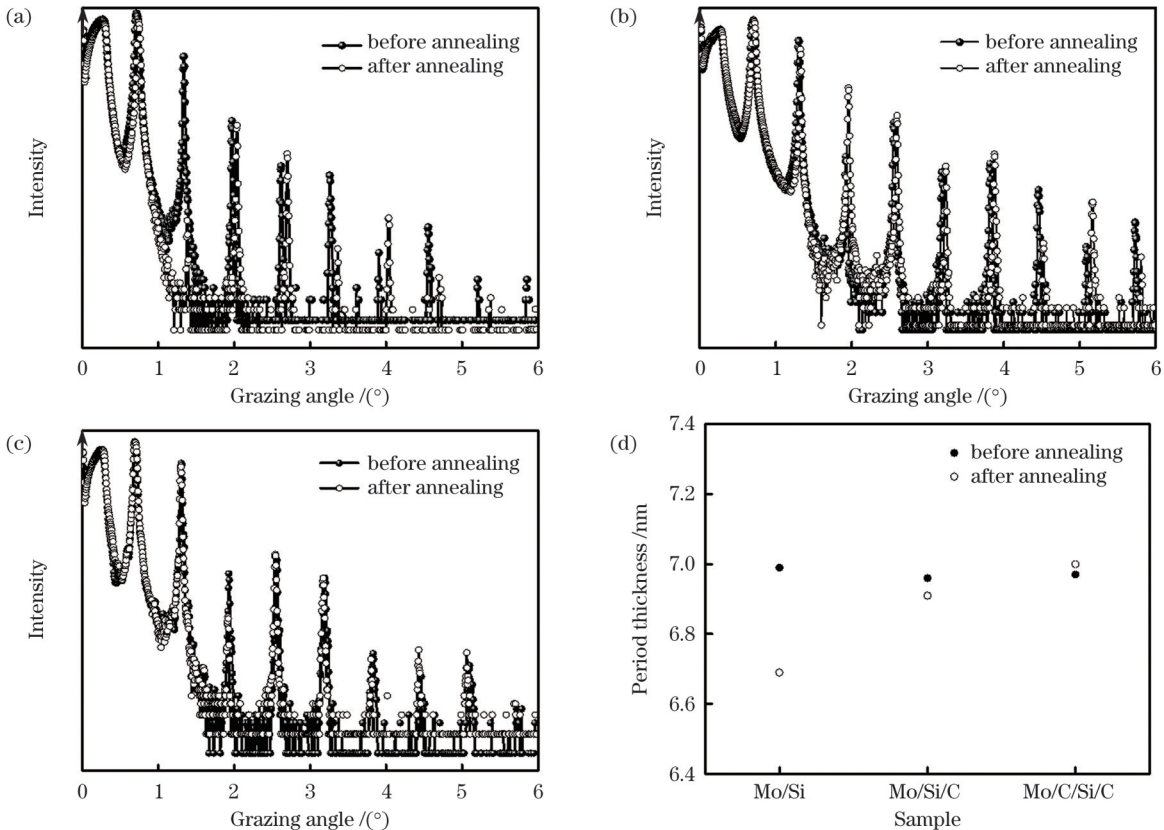


图 7 多层膜样品的 XRR 测试结果。(a)退火前后的 Mo/Si 样品;(b)退火前后的 Mo/Si/C 样品;(c)退火前后的 Mo/C/Si/C 样品;(d)退火前后 Mo/Si、Mo/Si/C 和 Mo/C/Si/C 样品的周期厚度

Fig. 7 XRR measurement results of multilayer film samples. (a) Mo/Si samples before and after annealing; (b) Mo/Si/C samples before and after annealing; (c) Mo/C/Si/C samples before and after annealing; (d) period thicknesses of Mo/Si, Mo/Si/C, and Mo/C/Si/C samples before and after annealing

Mo/C/Si/C 三种多层膜在 300 °C、2 h 条件下退火前后的周期厚度变化,结果如图 7(d)所示。Mo/Si 多层膜退火后的周期厚度由 6.99 nm 变为 6.69 nm,周期厚度减小约 0.30 nm。Mo/Si/C 多层膜退火后的周期厚度由 6.96 nm 变为 6.91 nm,周期厚度减小约 0.05 nm。对比 Mo/Si 多层膜和 Mo/Si/C 多层膜周期厚度的变化值,得知 Mo-on-Si 界面对热稳定性有显著影响。Mo/C/Si/C 多层膜退火后的周期厚度由 6.97 nm 上升至 7.00 nm,增大 0.03 nm。表明 C 阻隔层可以有效缓解 Mo 层和 Si 层界面处的相互扩散,提升了多层膜热稳定性。

3.5 C 扩散阻隔层对多层膜样品退火后 EUV 反射率的影响

为更加直观地对 Mo/Si、Mo/Si/C 和 Mo/C/Si/C 多层膜的热稳定性进行比较,对这三种多层膜样品进行 EUV 反射率测试,测试结果如图 8 所示,测试数据如表 2 所示。图 8(a)显示,Mo/Si 多层膜在 300 °C、2 h

条件下退火后,EUV 反射率由 64.4% 下降至 55.4%,变化量为 9.0%,中心波长向短波长方向偏移 0.51 nm,这是由于 Mo/Si 多层膜样品在退火后周期发生了收缩。图 8(b)显示,Mo/Si/C 多层膜在退火后 EUV 反射率由 66.4% 下降至 59.6%,中心波长向短波长方向偏移 0.11 nm。图 8(c)显示,Mo/C/Si/C 多层膜样品在退火后反射率仅下降 1.8%,中心波长仅偏移 0.02 nm,退火前后的测试曲线基本重合。

实验结果表明,Mo/Si/C 多层膜的带宽和 EUV 反射率在退火前后的变化也小于 Mo/Si 多层膜,证明在 Mo-on-Si 界面添加 C 阻隔层也可以提高 Mo/Si 多层膜的热稳定性。在三种多层膜样品中,Mo/C/Si/C 的 EUV 反射率、中心波长和带宽变化最小,说明这一样品具有最好的热稳定性,与 XRR 测试结果相符。综上所述,在 Mo-on-Si 和 Si-on-Mo 界面同时添加 C 阻隔层后,多层膜的热稳定性能得到最大幅度的提高。

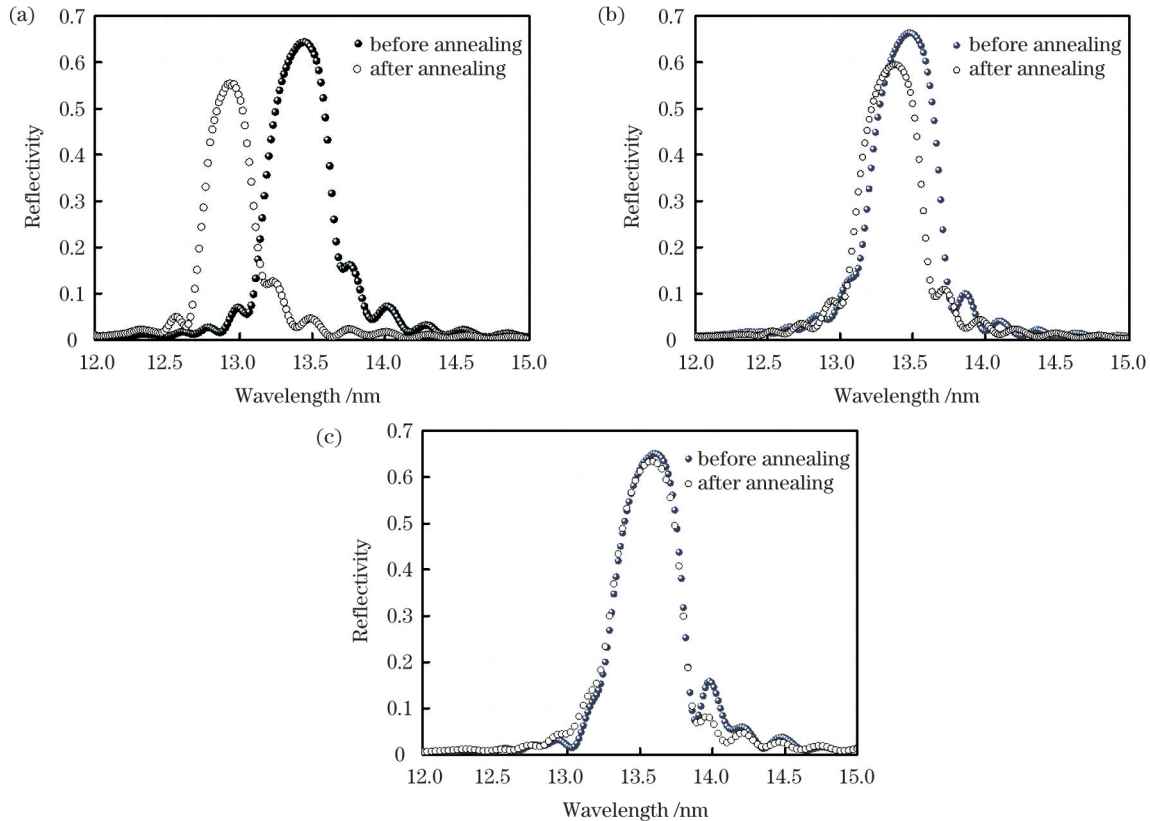


图 8 EUV 反射率测试结果。(a)退火前后的 Mo/Si 样品;(b)退火前后的 Mo/Si/C 样品;(c)退火前后的 Mo/C/Si/C 样品

Fig. 8 Measurement results of EUV reflectivity. (a) Mo/Si samples before and after annealing; (b) Mo/Si/C samples before and after annealing; (c) Mo/C/Si/C samples before and after annealing

3.6 C 扩散阻隔层对多层膜样品界面结构的影响

为更加清晰地观察 C 扩散阻隔层对 Mo/Si 多层膜样品界面结构的影响,对 Mo/Si 多层膜和 Mo/C/Si/C 多层膜样品进行了 TEM 测试,测试结果如图 9 所示,深色和浅色区域分别代表 Mo 层和 Si 层。从图 9(a)、(b)可看出,两组样品多层膜膜层十分平整,界面结构

清晰,成膜质量良好,而 Mo/C/Si/C 膜系样品界面更加平滑。由图 9(c)、(d)可看出,在 Mo/Si 多层膜中 Mo 层与 Si 层交界处明显有混合层形成,而在 Mo/C/Si/C 膜系中未观察到混合层存在,可以断定 C 层可以有效阻止界面处的扩散。因此,Mo/C/Si/C 多层膜在高温环境中能够表现出更加优秀的热稳定性。

表 2 300 °C、2 h 条件下退火前后的 EUV 反射率测试结果
Table 2 EUV measurement results before and after annealing at 300 °C for 2 h

Sample	Test content	Before annealing	After annealing	Variation
Mo/Si	Reflectivity	64.4%	55.4%	-9.0%
	Central wavelength /nm	13.44	12.93	-0.51
	Band width /nm	0.46	0.35	-0.11
Mo/Si/C	Reflectivity	66.4%	59.6%	-6.8%
	Central wavelength /nm	13.49	13.38	-0.11
	Band width /nm	0.49	0.45	-0.04
Mo/C/Si/C	Reflectivity	65.2%	63.4%	-1.8%
	Central wavelength /nm	13.61	13.59	-0.02
	Band width /nm	0.49	0.50	+0.01

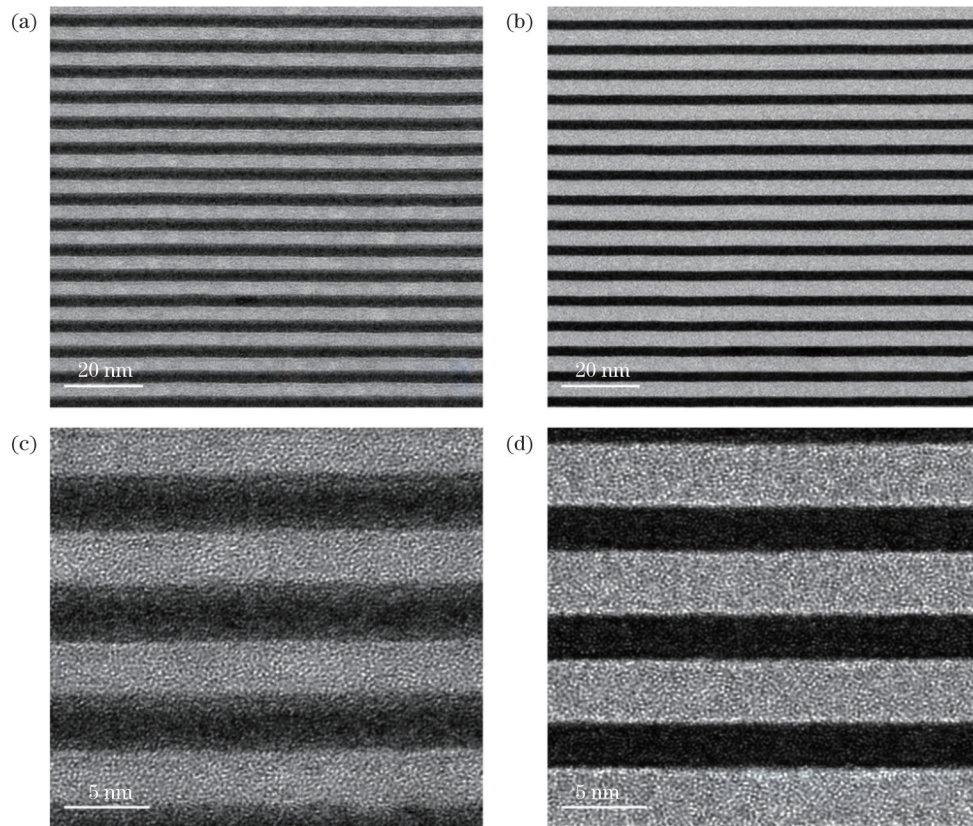


图 9 不同分辨率下的 TEM 测试结果。(a) Mo/Si 样品 (低分辨率); (b) Mo/C/Si/C 样品 (低分辨率); (c) Mo/Si 样品 (高分辨率); (d) Mo/C/Si/C 样品 (高分辨率)

Fig. 9 TEM measurement results at different resolutions. (a) Mo/Si sample (low resolution); (b) Mo/C/Si/C sample (low resolution); (c) Mo/Si sample (high resolution); (d) Mo/C/Si/C sample (high resolution)

4 结 论

首先,利用掩模板辅助法实现了大口径曲面基底上横向梯度 Mo/Si 多层膜的制备,通过掩模板的修正,300 mm 口径曲面基底上不同位置处的多层膜膜厚偏移均被控制在预期厚度的 $\pm 0.45\%$ 以内,并且不同位置处 Mo/Si 多层膜的成膜质量相同。研究结果可以为极紫外光源用反射镜等大尺寸曲面多层膜反射镜的制备提供参考。

同时,研究了添加 C 阻隔层后 Mo/Si 多层膜的热

稳定性变化,发现在 300 °C 的环境下,Mo/C/Si/C 多层膜的热稳定性最好,Mo/Si/C 多层膜次之,Mo/Si 多层膜最差。Mo/C/Si/C 膜系在 300 °C、2 h 条件下退火后反射率仅损失 1.8%,中心波长与带宽基本没有发生变化。

参 考 文 献

- [1] Chibana T, Nakano H, Hata H, et al. Development status of a 193-nm immersion exposure tool[J]. Proceedings of SPIE, 2006, 6154: 61541V.
- [2] Wang J W, Wang X B, Zuo D L, et al. Laser-induced liquid tin

- discharge plasma and its EUV spectra[J]. Chinese Optics Letters, 2020, 18(5): 051405.
- [3] 谢婉露, 吴晓斌, 王魁波, 等. 极紫外光源参数对极紫外辐照损伤测试系统聚焦光束性能的影响[J]. 中国激光, 2020, 47(6): 0601004.
- Xie W L, Wu X B, Wang K B, et al. Effect of EUV source parameters on focused beam performance of EUV radiation-damage-test system[J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(6): 0601004.
- [4] 林楠, 杨文河, 陈韞懿, 等. 极紫外光刻光源的研究进展及发展趋势[J]. 激光与光电子学进展, 2022, 59(9): 0922002.
- Lin N, Yang W H, Chen Y Y, et al. Research progress and development trend of extreme ultraviolet lithography source[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2022, 59(9): 0922002.
- [5] ASML. EUV lithography systems TW INSCAN NXE3600D[EB/OL]. (2022-01-18) [2023-12-01]. <https://www.asml.com/en/products/euv-lithography-systems/twinscan-nxe-3600d>.
- [6] Bijkerk F, Louis E, van der Wiel M J, et al. Performance optimization of a high-repetition-rate KrF laser plasma X-ray source for microlithography[J]. Journal of X-Ray Science and Technology, 1992, 3(2): 133-151.
- [7] Louis E, Yakshin A E, Goerts P C, et al. Mo/Si multilayer coating technology for EUVL: coating uniformity and time stability [J]. Proceedings of SPIE, 2000, 4146: 60-63.
- [8] Braun S, Mai H, Moss M, et al. Mo/Si multilayers with different barrier layers for applications as extreme ultraviolet mirrors[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2002, 41(1): 4074-4081.
- [9] Feigl T, Yulin S, Benoit N, et al. High-temperature LPP collector mirror[J]. Proceedings of SPIE, 2006, 6151: 61514A.
- [10] Morawe C, Pecci P, Peffen J C, et al. Design and performance of graded multilayers as focusing elements for X-ray optics[J]. Review of Scientific Instruments, 1999, 70(8): 3227-3232.
- [11] Sassolas B, Flaminio R, Franc J, et al. Masking technique for coating thickness control on large and strongly curved aspherical optics[J]. Applied Optics, 2009, 48(19): 3760-3765.
- [12] Yu B, Jin C S, Yao S, et al. Control of lateral thickness gradients of Mo-Si multilayer on curved substrates using genetic algorithm [J]. Optics Letters, 2015, 40(17): 3958-3961.
- [13] Perrin A, Gailliard J P. Planetary system for high-uniformity deposited layers on large substrates[J]. Proceedings of SPIE, 1993, 1782: 238-244.
- [14] Liu X Y, Zhang Z, Song H X, et al. Comparative study on microstructure of Mo/Si multilayers deposited on large curved mirror with and without the shadow mask[J]. Micromachines, 2023, 14(3): 526.
- [15] Broadway D M, Platonov Y Y, Gomez L A. Achieving desired thickness gradients on flat and curved substrates[J]. Proceedings of SPIE, 1999, 3766: 262-274.
- [16] Broadway D M, Kriese M D, Platonov Y Y. Controlling thin film thickness distribution in two dimensions[J]. Proceedings of SPIE, 2001, 4145: 80-87.
- [17] Yulin S, Benoit N, Feigl T, et al. Interface-engineered EUV multilayer mirrors[J]. Microelectronic Engineering, 2006, 83(4/5/6/7/8/9): 692-694.
- [18] Bosgra J, Veldhuizen L W, Zoethout E, et al. Interactions of C in layered Mo/Si structures[J]. Thin Solid Films, 2013, 542: 210-213.
- [19] 喻波. 极紫外多层膜厚度梯度控制及抗热损伤研究[D]. 长春: 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 2016.
- Yu B. Research on film thickness gradient control and thermal damage resistance of extreme ultraviolet multilayer films[D]. Changchun: Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, 2016.
- [20] Song H X, Zhang Z, Liu X Y, et al. Comparison of thermal stability of Mo/Si multilayers with different crystallinities of Mo layers[J]. Applied Optics, 2023, 62(10): 2636-2641.
- [21] 王占山, 黄秋实, 张众, 等. 极紫外、X射线和中子薄膜光学元件与系统[J]. 光学学报, 2021, 41(1): 0131001.
- Wang Z S, Huang Q S, Zhang Z, et al. Extreme ultraviolet, X-ray and neutron thin film optical components and systems[J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(1): 0131001.
- [22] Zhang Z, Qi R Z, Yao Y Y, et al. Improving thickness uniformity of Mo/Si multilayers on curved spherical substrates by a masking technique[J]. Coatings, 2019, 9(12): 851.
- [23] Nedelcu I, van de Krujjs R W E, Yakshin A E, et al. Temperature-dependent nanocrystal formation in Mo/Si multilayers[J]. Physical Review B, 2007, 76(24): 245404.

Thickness Control and Thermal Stability of Large-Diameter Mo/Si Multilayer Films for Extreme Ultraviolet Source

Liu Xiangyue¹, Zhang Zhe^{1*}, Jiang Li¹, Song Hongxuan², Yao Dianxiang¹, Huang Siyi¹, Xu Wenjie³, Huo Tonglin³, Zhou Hongjun³, Qi Runze¹, Huang Qiushi^{1**}, Zhang Zhong¹, Wang Zhanshan¹

¹*Institute of Precision Optical Engineering, School of Physical Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;*

²*College of Sciences, Shanghai University, Shanghai 200444, China;*

³*National Synchrotron Radiation Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230029, Anhui, China*

Abstract

Objective Mo/Si multilayer films exhibit the highest measured reflectivity in the extreme ultraviolet (EUV) region, and their combination with an EUV light source enables EUV lithography. In practical applications of EUV light sources, Mo/Si multilayer mirrors are always curved and have large diameters. The angle of the incident light constantly changes along the curved surface. To match the multilayer peak reflectivity with the angle of the incident light, the period thickness of the Mo/Si multilayer films must be distributed in a transverse gradient along the surface to ensure high EUV reflectivity. Simultaneously, given that the mirror is close to the light source, the multilayer films must operate in an environment with a high thermal load. Higher temperatures can increase the formation of silicide at the multilayer interface, causing the optical performance to decrease. Therefore, Mo/Si multilayer films for

EUV light sources also have high thermal stability requirements. To address these issues, we use a shadow mask to correct the periodic thicknesses of the multilayer films at different positions on a curved substrate with a diameter of 300 mm. Carbon is selected as the diffusion barrier material to investigate the influence of C-barrier layer on the thermal stability of Mo/Si multilayer.

Methods In this study, two sets of Mo/Si multilayer films are deposited via direct current(DC) magnetron sputtering onto super-polished silicon wafers, and the thickness control and thermal stability of the Mo/Si multilayer films are investigated separately. For the study of thickness control, the target period thickness is from 6.96 nm to 7.31 nm, and the ratio of Mo layer thickness to period thickness is approximately 0.40. As the multilayer thickness on a large curved substrate cannot be measured directly, we prepare a substituted substrate to estimate the multilayer thickness at selected points on the surface. The shadow mask technique is used to adjust the periodic thickness of the multilayer films at different positions on the entire mirror. C is selected as the barrier material for the thermal stability study. Mo/Si, Mo/Si/C, and Mo/C/Si/C multilayer films are annealed at 300 °C for 2 h. By observing the X-ray reflectivity (XRR) and EUV reflectivity before and after annealing, the effect of the C barrier layer on the thermal stability of Mo/Si multilayer films is investigated.

Results and Discussions In the study involving film thickness control, the XRR measurement results show that the samples at different positions exhibit similar layer structures (Fig. 4). Atom force microscope (AFM) tests are performed on Mo/Si multilayer films deposited at four different positions on the entire mirror. The surface roughness values of the four samples are 0.128, 0.123, 0.124, and 0.118 nm. The morphologies of the four samples are similar (Fig. 5). Using the shadow mask, the deviation of the period thickness on the 300-mm diameter curved substrate is controlled within $\pm 0.45\%$ of the expected period thickness (Fig. 6).

In the study involving thermal stability, after annealing at 300 °C for 2h, the period thickness of Mo/Si multilayer films changes from 6.99 nm to 6.69 nm, the period thickness of Mo/Si/C multilayer films changes from 6.96 nm to 6.91 nm, and the period thickness of Mo/C/Si/C multilayer films is almost same before and after the annealing, which changes from 6.97 nm to 7.00 nm. The C barrier layer can effectively mitigate the interdiffusion at the interface of the Mo and Si layers, which improves the thermal stability of the multilayer films (Fig. 7). The EUV reflectivity of Mo/Si multilayer films decreases from 64.4% to 55.4% after annealing at 300 °C for 2 h, and the central wavelength has a shift of 0.51 nm. The EUV reflectivity of the Mo/Si/C multilayer films decreases from 66.4% to 59.6% after annealing, and the center wavelength shifts by 0.11 nm. The reflectivity of Mo/C/Si/C multilayer films decreases by 1.8% after annealing, and central wavelength shifts by 0.02 nm (Fig. 8 and Table 2). Furthermore, the EUV reflectivity results show that the C barrier inserted at both interfaces of the Mo/Si multilayer films can significantly improve thermal stability.

Conclusions Initially, graded Mo/Si multilayer films are deposited on a large-diameter curved substrate using a shadow mask. Compared with the designed period thickness, the deviation in the period thickness at different positions on the entire substrate is controlled within $\pm 0.45\%$. The layer structure and surface roughness of the Mo/Si multilayer films are almost identical at different positions. This study provides useful guidance for the fabrication of large curved multilayer mirrors for EUV light sources. Next, the thermal stability of the Mo/Si multilayer films is investigated after inserting a C-barrier layer. The results show that the thermal stability of the Mo/C/Si/C multilayer films is optimal, and that of the Mo/Si multilayer films is the worst. The Mo/C/Si/C multilayer films exhibit only 1.8% reflectivity loss after annealing at 300 °C for 2 h, and the center wavelength and bandwidth do not change. The higher reflectivity and multistability of Mo/Si multilayer films for EUV sources are currently under investigation.

Key words laser optics; extreme ultraviolet light source; Mo/Si multilayer films; magnetron sputtering; film thickness control; thermal stability