

應用於極紫外光波段之柱狀多層膜反射鏡

High-reflective Cylindrical-nanostructure Multilayer Mirrors for Extreme Ultraviolet Radiation

王志中、李昭德、李佳翰

Chih-Chung Wang, Chao-Te Lee, Jia-Han Li

目前的半導體製造流程中使用極紫外線 (extreme ultraviolet, EUV) 技術，並且通常設計和使用鉬 (Mo) 和矽 (Si) 多層膜作為反射鏡。我們提出了利用圓柱形鉬 (Mo) 和矽 (Si) 的混合結構多層，每層矽柱體都有空氣空間，我們稱之為多層柱面鏡，可以應用於目前的半導體製程製造。因此，這導致每層矽柱體中的折射率增加並降低消光係數，並且其導致多層堆疊內相長干涉的增強。根據使用時域有限差分方法的數值模擬結果，我們提出的多層柱面鏡的反射率可以從傳統 40 週期 Mo/Si 多層的 74.5% 提高到 76.6%。由於 EUV 微影中通常需要 8 至 12 個反射鏡，因此我們在本研究中提出的設計有潛力用作 EUV 輻射的高反射率反射鏡，並在相同的 EUV 光源下有機會提高晶片產量。

In the current semiconductor manufacturing process, extreme ultraviolet (EUV) technology is employed, and molybdenum (Mo) and silicon (Si) multilayer films are typically designed and used as mirrors. We propose using a hybrid multilayer structure of cylindrical Mo and Si with air spaces in each Si layer, referred to as multilayer cylindrical mirrors, which can be applied in the existing semiconductor manufacturing process. This design increases the refractive index in each Si layer and reduces the extinction coefficient, enhancing constructive interference within the multilayer stack. According to numerical simulations using the finite-difference time-domain (FDTD) method, the reflectivity of our proposed multilayer cylindrical mirrors can be increased from 74.5% in traditional 40-cycle Mo/Si multilayers to 76.6%. Given that EUV lithography typically requires 8 to 12 mirrors, the design we propose in this study has the potential to serve as high-reflectivity mirrors for EUV radiation, potentially increasing wafer throughput under the same EUV light source.

一、前言

鉬 (Mo) 和矽 (Si) 多層反射鏡在極紫外 (EUV) 微影中發揮重要作用，極紫外 (EUV) 微影是高效能電腦運算晶片、光學元件和微電子元件的現今最先進的半導體製造製程。EUV 反

射鏡要求高反射率、低損耗、高穩定性，以確保生產的可靠性和質量，滿足微影製程的精確要求。高反射率多層 EUV 反射鏡的設計及其製造技術經過數十年的研究和演進⁽¹⁾，微影技術發展到可以刻出更小的關鍵尺寸，是晶片中積體電路製造的核心技術。根據瑞利準則 (Rayleigh's law)，尺寸的解析分辨率可以透過減少波長大小和增加數值孔徑可以得到改善。而縮小關鍵尺寸最直觀的方法是採用波長較短的新光源。過去幾十年來，光學微影所使用的波長從 436 nm 的藍色光譜到 13.5 nm 的 EUV，波長減少 96.9%。透過混合其他技術，對應的關鍵尺寸從 7000 nm 縮小到 7 nm，減少了 99.9%。1972 年，研究揭示了波長 5 至 50 nm 的多層反射鏡的設計⁽²⁾，並顯示反射率的性能超過 25%。它是應用於極紫外波長的早期研究之一。當處理非吸收膜時，傳統的厚度方法是每層使用四分之一光波長的厚度。然而，該材料 Mo 及 Si 會吸收 EUV 波段的光輻射，因此層厚度將稍微偏離四分之一波長。其他研究也指出，如果在 40 對 Mo/Si 中優化厚度，高吸收層與高低吸收層總和的比例約為 0.4，反射率可能提高 0.5%–1.0%⁽³⁾。有相關研究⁽⁴⁾ 表明，當光波長為 13.4–13.6 nm 時，Mo 和 Si 層的厚度約為 2.9–3 nm 和 4 nm 可以有較佳的反射率表現。根據布拉格定律 (Bragg's law)，採用高、低折射率成對週期結構材料的多層膜反射鏡可以透過相長干涉來實現強烈反射。但由於製造過程中對薄膜厚度和表面粗糙度的控制，測得的反射率會略低。對於超過 40 層的多層鏡，隨著 Mo/Si 對數的增加，反射率會略有增加⁽⁵⁾。多層反射特性的探索遵循菲涅耳方程式的應用，該方程式用於計算 Mo/Si 多層膜在 13.5 nm 極紫外線波長下的反射率。當光源照射到 Mo/Si 多層結構時，入射電磁場分為折射和反射分量。菲涅耳方程式 (Fresnel equation) 可以用來辨別這些成分之間的相互作用，從而揭示反射率和穿透率。對於菲涅耳方程式⁽⁶⁾ 的多層計算，隨著堆疊中 Mo/Si 對數量的增加，反射率不斷增強。由於材料固有的消光特性，反射率達到 70% 後增長非常緩慢。然而，一旦堆疊達到 40 對，反射率逐漸收斂於 75% 左右⁽¹⁾。經過最佳化⁽³⁾ 以實現最大反射率後，Mo 層及 Si 層的厚度總合，也就是週期厚度約為 6.8–7.0 nm，其中 Mo 層佔了週期厚度的 0.4。透過模擬優化⁽³⁾ 和實際測試⁽⁷⁾ 對 Ru-Mo/Si 進行了進一步的研究。相關研究也探討了利用不規則非週期性厚度來提高 Mo/Si 多層薄膜的反射率^(8, 9)，但反射率並沒有顯著提高。另一方面，也有使用三種材料重疊的相關研究⁽¹⁰⁾，例如 Ru-Mo/Si 相互重疊，反射率達 76%。

二、研究目的

李彥旻博士等人⁽¹¹⁾ 在 Si 層中引入真空空隙，反射率隨真空空隙體積成比例增加，範圍為 73.43%–83.24%。該技術大大增強了反射率，但該結構難以製造。Mo 在 13.5 nm 波長範圍內比 Si 具有更大的消光係數，因此 Mo 被設計為吸收體以定位於低強度駐波場。透過使用混合到真空中的矽層，其他高強度區域將具有較小的消光係數。此外，由於將 Si 層添加到真空中而引起的反射率的升高是由於 Si 層和 Mo 層之間的折射率差距的放大而引起的，從而增強了干涉現象。根據以往的研究，每層具有特定結構並適當設計的 EUV 多層鏡有可能獲得高反射率。因此，我們希望提出一種新穎且可製作的結構，稱為柱狀多層膜反射鏡，以實現 EUV 輻射的高反射率。製造流程從 Mo/Si 多層膜開始，之後透過自上而下的電子束或氬離子束微影製程來蝕刻結構。隨後，應用交替顯影過程，針對矽層進行溶解。溶解時間可用於控制矽層柱體的半徑寬度，進而增加奈米結構內的真空體積。這種差異有利於增加夾層內的真空體積，也用於製造受 Morpho 蝴蝶翅膀啟發的層狀結構⁽¹²⁻¹⁵⁾，並希望未來有實現製作的可能。

三、研究內容與方法

我們採用時域有限差分數值方法模擬電磁波計算，模擬域跨越 x 、 y 、 z 方向，尺寸設定為 $13.5\text{ nm} \times 23.38\text{ nm} \times 276\text{ nm}$ ，邊界條件對稱。為了方便模擬，柱的排列週期 (pitch) 設定為 13.5 nm 。Mo 層和 Si 層的厚度設定為 2.78 nm 和 4.17 nm ，模擬光源的波長範圍為 12.5 nm 至 14.5 nm ，而入射角固定為 6° 。在矽基板上建構了 40 層 Mo/Si 多層的 EUV 反射鏡，有 n 層圓柱形奈米結構 Mo/Si 層和 $(40-n)$ 層 Mo/Si 層多層膜，其中 n 分別為 1、3、5、10、20，如圖 1 所示。柱子排列成六邊形網格，間距為 13.5 nm ，可使排列更加緊密。為了增加 Si 的空氣夾層，圓柱體中 Si 的半徑保持為 Mo 半徑的 50%，而 Mo 半徑設為 5 nm 。

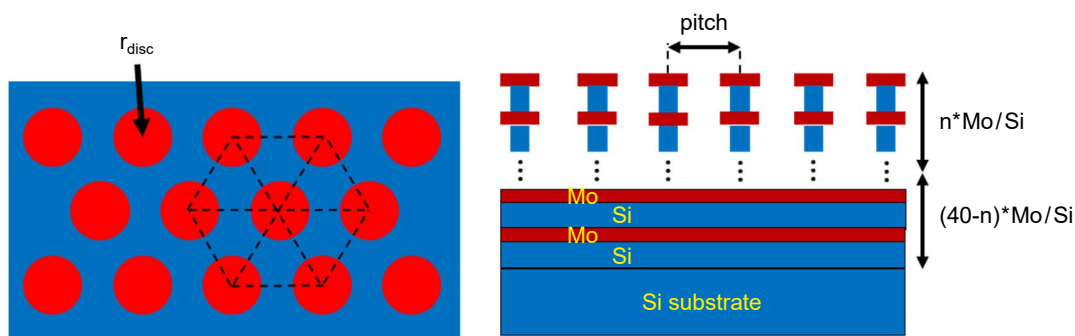


圖 1. 混合的 40 層 Mo/Si 多層柱和薄膜俯視圖 (左) 及縱剖面圖 (右)。

四、結果與討論

首先的討論根據如圖 2 所示的數值模擬結果，混合柱體及多層膜的結構與反射率提高到與反射率約為 74.5% 的傳統 40 週期 Mo/Si 多層膜相比，反射率可以提升至 75.9%。其中，以混合柱體一層 ($n = 1$)、三層 ($n = 3$)、五層 ($n = 5$)，反射率分別提升為 74.7%、75.3%、75.7%。反射率的峰值波長從傳統 40 週期 Mo/Si 多層膜的 13.52 nm 偏移至 13.58 nm ，且整體的反射峰頻寬並沒有太多的變化。直到混合柱體來到 10 層 ($n = 10$)，反射率峰值也的確有更高，來到 75.9%，但增加幅度已趨緩，且整體的反射峰頻寬其實有減少了一些，峰值波長維持在 13.58 nm 。最後混合柱體到了二十層 ($n = 20$)，反射率峰值反而變得更少，峰值波長偏移到 13.63 nm ，且反射峰頻寬大幅度的消滅。在柱體數量的案例中，選擇五層或是十層會是比較好的選擇，在前述的狀況在 Mo 半徑固定 5 nm ，也就是柱面距離彼此相距 3.5 nm 的狀況下，圓柱體中 Si 的半徑保持為 Mo 半徑的 50%。

此外另一個討論如圖 3 所示的數值模擬結果，在混合柱體十層 ($n = 10$) 且 Mo 半徑固定 5 nm ，但這次是改變 Si 的半徑比例，為 Mo 半徑的 $1/2$ 、 $1/3$ 及 $1/4$ 。反射率的峰值波長從傳統 40 週期 Mo/Si 多層膜的 13.52 nm 偏移至 13.58 nm ，反射率分別提升為 75.8%、76.4%、76.6%。在這個討論可以看到改變柱體 Si 層的半徑比例減少，使之真空體積增加，的確可以提升反射率。也就是說，對於設計上的討論，可以採用增加適當數量的柱體以及對 Si 層做更多蝕刻以致半徑比例減少等方式去增加比單純 40 層 Mo/Si 多層膜更大的反射率。此外，從更實際的材料加工角度來看，在採用電子束或離子束微影的情況下，圓柱體表面無法完美接觸，導致 Mo 半徑無法達到 6.75 nm 。根據不同的光束尺寸，不可能創建可以模擬最大反射率的尺寸。光束尺寸的限制約為 3 nm ，將材料製造過程中的最大柱半徑限制在 5 nm 左右。儘管在其他較大半徑下模擬結果良好，但實際製造過程預計會遇到製程限制的挑戰。

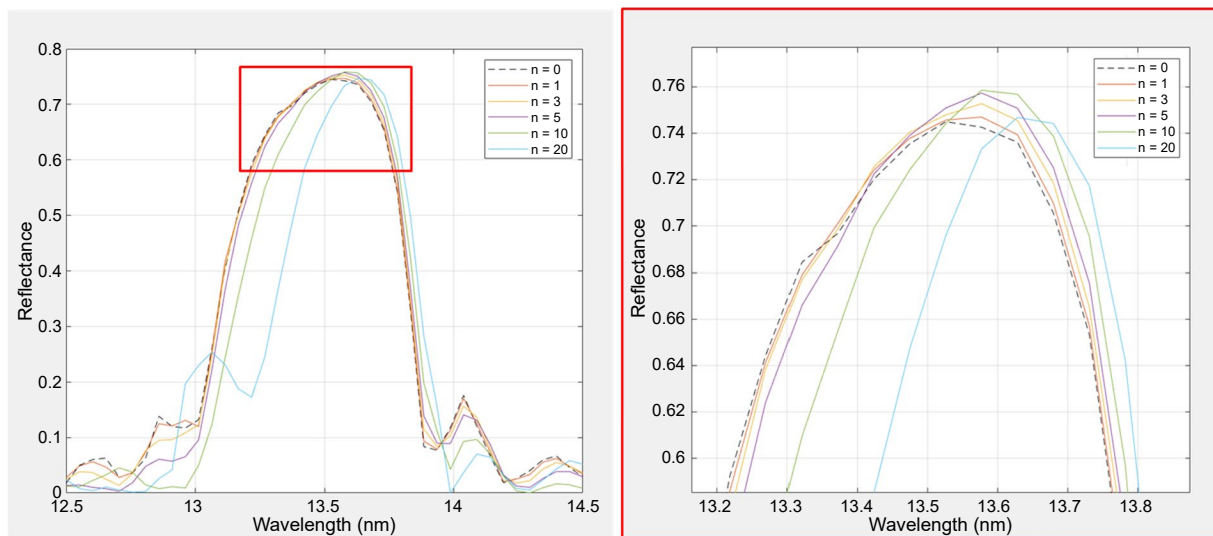


圖 2. 傳統 40 對 Mo/Si 多層膜及多層柱和膜混合 ($n = 0、1、3、5、10、20$) 在 12.5 nm—14.5 nm 範圍內的反射率 (左)，以及局部 13.2 nm—13.8 nm 範圍內的反射率 (右)。柱體 Mo 半徑固定為 5 nm，圓柱體中 Si 的半徑保持為 Mo 半徑的 50%。

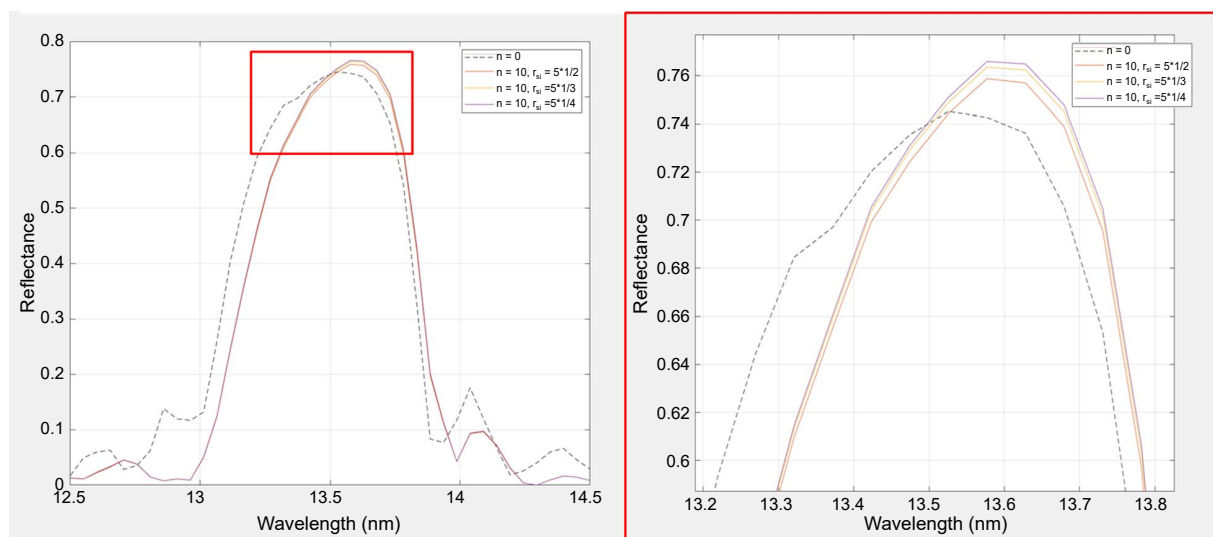


圖 3. 40 層 Mo/Si 多層柱和膜混合 ($n = 10$) 在 12.5 nm—14.5 nm 範圍內的反射率 (左)，以及局部 13.2 nm—13.8 nm 範圍內的反射率 (右)。柱體 Mo 半徑固定為 5 nm，圓柱體中 Si 的半徑由 Mo 半徑的 1/2、1/3、變化到 1/4。

最後，我們來回顧一下前面的討論。使用柱狀層狀結構，可以控制柱狀結構的數量和矽層的半徑以增加反射率。這將為設計鉬矽多層反射鏡提供一種新方法，可用於改進極紫外光波段的微影製程。目前的微影製程在極紫外光波段的反射光路系統中，至少會發生十次反射⁽¹⁾。當混合柱體十層 ($n = 10$)，圓柱體 Mo 和 Si 的半徑保持在 4 : 1 且 Mo 的半徑為 5 nm 時，反射率為 76.6%，是基本 40 對 Mo/Si 多層膜 74.5% 的 1.028 倍。原來的 $1.028^{10} \approx 1.318$ 倍，比原來的傳統多層膜提高了 31.8%。EUV 微影製程中反射鏡多次反射之下，能夠設計出有潛力用作 EUV 輻射的高反射率反射鏡，並在相同的 EUV 光源下提高晶片產量。

五、結論

我們成功地提出了 Mo/Si 多層相關模擬，並表明中空中間層的柱狀結構可以提高反射率。我們提出的結構的反射率可以增加至約 76.6%，比傳統的 40 週期 Mo/Si 多層膜的反射率約 74.5% 提升了約 2.1%。在結果與討論部分，增加圓柱體結構和減少 Si 柱體半徑兩種方法都可以提高反射率。但後續需要進一步研究探索生產過程並實現實際成品的製造，探索可製造的尺寸，它將顯著提高極紫外光微影製程的效率。

參考文獻

1. Yen-Min Lee, "Efficient Extreme Ultraviolet Mirror Design: An FDTD Approach," Iop Publishing Ltd., (2021)
2. E. Spiller, *Applied Physics Letters*, **20** (9), 365 (1972).
3. M. Singh and J. J. M. Braat, *Applied Optics*, **39** (13), 2189 (2000).
4. R. Jonckheere et al., "Assessment of EUV reticle blank availability enabling the use of EUV tools today and in the future," *23rd European Mask and Lithography Conference*, Jan 22-26, **6533** (3), 314 (2007).
5. P.-Y. Yan, "Masks for extreme ultraviolet lithography Handbook of Photomask Manufacturing Technology 1st edn ed S Rizvi (Boca Raton, FL: CRC Press) ch 11," (2005).
6. Steven J. Byrnes, "Multilayer optical calculations" , *Computational Physics* (2016)
7. In-Yong Kang; Tae Geun Kim; Seung Yoon Lee; Jinho Ahn; Yong-Chae Chung, *Japanese Journal of Applied Physics*, Part 1: Regular Papers and Short Notes and Review Papers, **43**, 3700 (2004).
8. Maria Guglielmina Pelizzo, Michele Suman, Gianni Monaco, Piergiorgio Nicolosi, and David L. Windt, *Optics Express*, **16** (19), 15228 (2008).
9. Michele Suman, Maria-Guglielmina Pelizzo, Piergiorgio Nicolosi, and David L. Windt, *Applied Optics*, **47** (16), 2906 (2008).
10. Hwan-Seok Seo, Jinhong Park, Seung-Yoon Lee, Joo-On Park, Hun Kim, Seong-Sue Kim, and Han-Ku Cho, "Properties of EUVL masks as a function of capping layer and absorber stack structures", *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering* 6517, March 21 (2007).
11. Yen-Min Lee, Jia-Han Li, Kuen-Yu Tsai, *Journal of Micro/Nanolithography, MEMS, and MOEMS*, **12** (4), 043005 (2013).
12. H. Holscher, J. Leuthold, S. Diwald, and R. H. Siddique, *Optics Express*, **21** (12), 14351(2013).
13. R. E. Rodriguez et al., *ACS Appl Mater Interfaces*, **10** (5), 4614 (2018).
14. T. Jiang, Z. Peng, W. Wu, T. Shi, and G. Liao, *Sens Actuators A Phys*, **213**, 63 (2014).
15. W. Wang, G. P. Wang, W. Zhang, and D. Zhang, *Nanophotonics*, **7** (1), 217 (2018).

作者簡介

王志中先生為國立臺灣大學工程科學及海洋工程學系博士班研究生。

Chih-Chung Wang is currently a Ph.D. student in the Department of Engineering Science and Ocean Engineering at National Taiwan University.

李昭德先生為國立臺灣大學材料科學與工程學系博士，現為國家實驗研究院台灣儀器科技研究中心研究員。

Chao-Te Lee received his Ph.D. in the Department of Materials Science and Engineering from the National Taiwan University. He is currently a Research Fellow at Taiwan Instrument Research Institute, NARLabs.

李佳翰先生為美國普渡大學電機與資訊工程學博士，現為國立臺灣大學工程科學及海洋工程學系教授。

Jia-Han Li received his Ph.D. in Electrical and Computer Engineering from the Purdue University, USA. He is currently a Professor in the Department of Engineering Science and Ocean Engineering at National Taiwan University.