

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 6日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22360146

研究課題名（和文） EUV 干渉露光による 20nm 以下の極微細パターン形成

研究課題名（英文） Resist pattern replication using EUV interference lithography for 20 nm and below

研究代表者

渡邊 健夫 (TAKEO WATANABE)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・准教授

研究者番号：70285336

研究成果の概要（和文）：13.5 nm の波長を有する極端紫外光（EUV 光）による干渉露光系を用いて、15 nm の線幅を有するライン・アンド・スペース（L/S）のレジストパターン形成に成功した。これは、振動の低減、30 nm の L/S パターンを有する透過型回折格子の製作を進め実現した。加えて、高感度かつ低 LWR の開発を目的にレジストの反応解析、高分子レジスト並びに低分子レジストの骨格、並びに各種酸発生剤の検討を進めた。

研究成果の概要（英文）：Resist pattern of 15 nm line and space was replicated using EUV interference lithographic tool which was developed at the BL9B beamline of the NewSUBARU synchrotron radiation facility. The fabrication of the transmission grating for 1X nm resist pattern replication was succeeded. Furthermore, the resist chemical reaction study for increasing sensitivity and decreasing line width roughness, base resin selection of polymer and monomer, and photoacid generator selection were carried out.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	10,800,000	3,240,000	14,040,000
2011 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2012 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2013 年度	0	0	0
2014 年度	0	0	0
総計	14,700,000	4,410,000	19,110,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス

キーワード：微細プロセス技術、極端紫外線リソグラフィ、干渉露光、レジスト

1. 研究開始当初の背景

半導体の微細化は、ムーアの法則に従い2～3年毎に進んでおり、2015年～2016年には回路配線の線幅が22nm、さらに2020年には線幅が11nmになると予測されている。極端紫外線（13.5nm）を用いたリソグラフィ（EUVL）に期待が寄せられている。感光性材料（レジスト）に要求されている線幅バラツキ（LWR;

line width roughness) は22nm世代で1.2nm以下、11nm世代で0.6nm以下であり、これは分子サイズの1/10以下である。また要求される感度も10mJ/cm²以下である。これまでにIMEC(欧州)、SEMATECH(米国)、SELETE(日本)を中心とした研究コンソーシアムでは、EUVLのα機を用いて25nmまでの解像性能を持つレジストの開発が進められているが、感度とLERを共に満足するレジストの開発に至っていない

い。我々はこれまでに、ニュースバル放射光施設にEUVL専用ビームラインを構築し、レジスト感度の高精度測定、EUV光照射によるアウトガス測定、並びに計算機を用いたレジスト構造の化学反応解析等を進め、32nm用高感度レジストの開発に成功している。しかしながら、EUVLによる更なる微細化を実現するためには、20nm以下の解像度を評価できる露光装置が必要となる。

2. 研究の目的

本研究では、EUV光による干渉露光(EUV-IL)系の高度化を図り、これまでに構築したEUVレジストの分析手法等による学術的な観点から感度とLWRの課題を解決し、20nm以下の極微細パターン形成を実現する。

(1) EUV-IL用高精度回折格子の製作法の開発

これまでに開発を進めて来たEUV-ILのキーとなる透過型回折格子の製作プロセスの高度化を図り、線幅20nm以下の解像性評価を可能にするラインパターン用回折格子、ドットパターン用回折格子を製作する。世界のレジスト材料の約7割のシェアをもつ日本のメーカーではその拠点が無く、本研究でEUV-ILを開発する意義は大きい。

(2) 感光剤に吸収が大きい構造を有するレジスト材料の開発

露光感度向上には酸の発生効率の向上が重要となる。従来の酸発生剤であるレジストの場合には、EUV光照射では1個の酸発生剤(PAG)から1個の酸しか生成されない。これに対してcyclo(1,3-perfluoro propane disulfone) imidate構造をもつ酸発生剤を用いたレジスト場合には、EUV光照射では1光子から複数個の酸が生成される。これは四重極質量分析器とFT-IRの分析の結果、並びに摂動論的電子軌道計算結果から、酸発生剤のアニオン部にフッ素原子や酸素原子が含まれていると、アニオン部が光分解反応されやすいことが分かった。一般的にEUV光照射により一つの酸発生剤から酸が1個生成されるのに対して、上記した酸発生剤では複数の酸が発生する知見を得た。当該研究では、上記の成果を基にcyclo(1,3-perfluoro-propane disulfone) imidateに類似した構造をもつ酸発生剤について、反応解析を進めEUV光に有効な新酸発生剤の開発を進める。

(3) 酸発生剤内包型レジストの低分子レジストへの適用

従来レジストでは、ベースレジンと酸発生剤を溶媒に溶かしてレジスト溶液を作成するために、ウェハの径方向と厚み方向の酸発生剤の濃度が不均一になる。一方、新規レジストでは酸発生剤を直接ベースレジンに付

加させるために、酸発生剤の濃度分布が均一になり、低LWRを実現できる。また、酸発生剤がベースレジンに直接付加されているので、反応に寄与する電子の移動度が従来レジストよりも格段に早くなり、高感度が期待できる。酸発生剤内包型高分子系レジストでは電子線露光により、従来レジストの1/3のLWR 2.0nmを達成し、また、低分子モノマー系では25nmまでの解像度を確認し、EBの感度として従来レジストの約10分の1の高速化を達成した。以上の知見から20nm以下のレジストでは内包型でかつ低分子モノマー系基材を中心に開発を進める。

3. 研究の方法

(1) 干渉露光用高精度回折格子の製作法の開発 (H22年度～H23年度)

ニュースバル放射光施設は世界最大級の11m長のアンジュレータ(LU)を保有しており、ここから発生するEUV光の強度は偏向電磁石光源に比べて約1000倍程度強度の高いコヒーレント光が生成できる。このためLUは干渉露光に最適な光源と言える。この光源の下流にBL9Bビームラインが構築されている。

2光束方式の干渉露光では、透過型回折格子の2つの開口部から回折された+1次光、-1次光をサンプル面に重ね合わせた際に、両者の位相が合致した位置に倍周期の干渉フリッジが生成される。このように、回折格子のピッチの半分の大きさのピッチをもつレジストパターンがウェハ上に形成される。したがって、20nm以下のパターン形成では、80nm以下のパターンピッチをもつ透過型回折格子を開発する必要があり、高精度なドライエッチング技術が要求される。このドライエッチングの課題は選択比の向上である。そこで、SiO₂薄膜とTa₂N薄膜の2層構造膜にドライエッチング法を適用しハードマスクプロセスを導入する。高精度透過型回折格子の製作方法を示す。(a)膜厚300nmのSiNを成膜した4インチシリコンウェハを用意して、(b)片面に100nmの厚みでTa₂Nをスパッタし、(c)その上に電子線レジストを塗布する。(d)電子線リソグラフィにより回折格子のレジストパターンを形成し、(e)塩素ガスによるドライエッチング法によりレジストをマスクに回折格子のSiO₂パターンを形成後、(f)CF₄ガスによるドライエッチング法によりSiO₂をマスクに回折格子のTa₂Nパターンを形成する。その後、(g)Ta₂Nをマスクに透過部のSiN膜を70nm程ドライエッチングを行い、更にCF₄ガスによるドライエッチング法によりガラスマスクを用いて裏面エッチング領域のSiNを除去する。最後に(h)KOH溶液を用いたウェットエッチングでSiNをマスクにして裏面のシリコンをエッチングして(i)透過型の回折格子を製作する。

(2) 干渉露光系の高度化 (H22年度からH23年度)

①高精度透過型回折格子用真空ステージの開発

真空中駆動ステージ：干渉系の開発では2つの波面の位相を長時間安定に保持する必要がある。剛性の高い、角度補正機能を有する3軸ステージを開発する。また、回折格子とサンプルを共通の基盤の上に門型構造とし、熱と静的な安定性を高める。

②試料交換用ロードロック室の構築

露光の能率を向上させるために試料交換用ロードロック室を構築する。この予備真空排気室を設けることで使用交換時に真空引きに要する時間が約1/5に短縮され、レジスト評価の能率が約5倍向上できる。

③真空排気系の振動除去

20nm以下のパターン形成では更なる振動の低減が課題となるので、真空排気系に振動の無いイオンポンプを導入し、振動の低減を図る。

(3) 酸発生剤内包型モノマーレジストの開発 (H23年度からH24年度)

低分子モノマー系について酸発生剤内包型低分子レジストの開発を進める。

① 反応収率の高い酸発生剤の開発

各種分析手法により、酸発生剤のEUV光照射での光化学反応を解析し、反応収率の高い酸発生剤の開発を進める。

② 酸発生剤内包型低分子レジストの合成

感光性多価フェノールをベースレジストに用いる。これらは高い解像性をもち、更にノボラック樹脂と同等の高いエッチング耐性を有する知見を得ている。この低分子モノマーのOH基に酸発生剤付きの保護基で置換し、酸発生剤内包型低分子レジスト剤を合成する。最後に合成したレジスト剤を溶媒に溶解させてレジスト溶液を調合する。このレジストを干渉露光系にて評価を行い、20nm以下のパターン形成を目指す。

4. 研究成果

(1)透過型回折格子の製作

SiO₂ のハードマスクプロセスを適応することで、15 nm のパターン形成に必要な 30 nm ライン・アンド・スペースの吸収体を有する透過型回折格子の製作を進め、製作を実現した。この製作プロセスには、半導体プロセスで使用されている SiO₂ のハードマスクプロセスを適用し、ドライエッチングによる微細パターン形成を実現した。さらに、0 次光成分による露光の影響を低減するために、センターストッププロセスを適用することで、ウェハ上に高いコントラストの干渉フリンジを得られるようにし、転

写されるレジストパターンコントラストを改善した。

(2)干渉露光の高度化

①透過型回折格子用高精度ステージの開発

レジストパターン形成において、後述する透過型回折格子の設計や製作だけでなく、ウェハや透過型回折格子上の振動の有無が大きな問題となる。hp 22 nm 世代のレジストを評価するにあたり、1 nm オーダーの LER 精度が要求されているため、5nm 程度まで振動を低減する必要がある。本露光装置は除振台の上に設けており、周辺からの大きな振動の影響はない構造になっている。また露光装置内のステージ機構にはすべてステッピングモータを使用しており、励磁状態で大きな静止トルクが得られており振動はない。しかしながら、真空中では通電による熱膨張が原因でステージのドリフト発生の要因となるため、無励磁状態（通電していない状態）で露光を行う必要がある。このため、剛性の高いステージ機構に改造し、振動の低減を図った。③の施策と併せて 30 nm の最大振幅を 5 nm にまで軽減できた。

②試料交換用ロードロック室の構築

4 インチウェハ試料交換用にロードロック室を構築した。これにより、試料交換に要する時間が 15 分程度となり、実験効率を大幅に改善できた。

③真空排気系の振動除去

振動測定をした結果、スクロールポンプからの低周波の振動が問題であった。スクロールポンプからの振動が伝わらない工夫をすることで、振動の低減を図り、①の施策と併せて、30 nm の最大変位をおよそ 5 nm にまで軽減できた。これにより、1X nm のパターン形成が可能となる。図 1 に振動測定結果を示す。

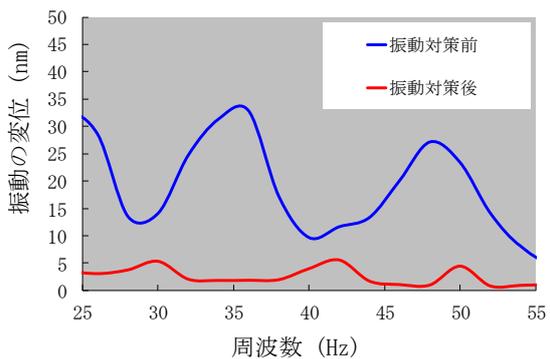


図 1. 振動測定結果

(3) 酸発生剤内包型低分子レジストの開発

①反応収率の高い酸発生剤の開発

放射光による軟 X 線領域の吸収分光法とアウトガスによる分解生成物の測定実験により、酸発生剤の反応解析を進めた。この結果、一部の酸発生剤では、従来のイオン化反応に加

えて、反応も起こることが確認できた。

② 発生剤内包型低分子レジスト

モノマー系レジストの開発を進めた。20 nm 程度の解像性能を確認したが、15 nm のパターン形成にまでには、至らなかった。今後は、解像度の向上を目指す。

(4) EUV 干渉露光系を用いたパターン形成

2 光束の EUV 光による干渉露光系を用いて、製作した透過型回折格子を用いて 1X nm のパターン形成を進めた。この結果、図 2 に示すように、15 nm L/S パターンを実現した。さらに、4 光束の EUV 光による干渉露光系を用いて、図 3 に示すように 28 nm のホールパターン形成を実現した。

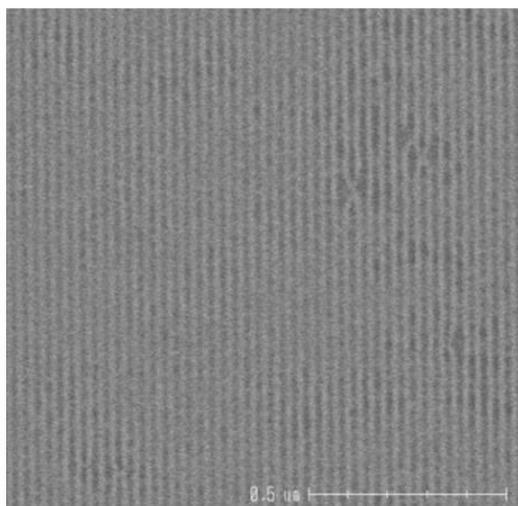


図 2. 15 nm L/S パターン

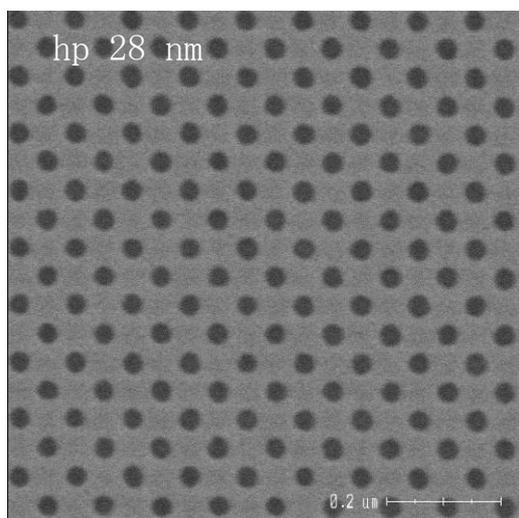


図 3. 28 nm ホールパターン

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- (1) Takeo Watanabe, Yuichi Haruyama, Daiju Shiono, Kazuya Emura, Takuro

Urayama, Tetsuo Harada, and Hiroo Kinoshita, Chemical Reaction Analysis of EUV CA Resist using SR Absorption Spectroscopy, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 25, 2012, pp. 569-574. URL: <http://www.photopololymer.org>

- (2) Hiroto Kudo, Nobumitsu Niina, Tomoharu Sato, Hiroaki Oizumi, Toshiro Itani, Takuro Miura, Takeo Watanabe and Hiroo Kinoshita, Extreme Ultraviolet (EUV)-Resist Material Based on Noria (Water Wheel-like Macrocycle) Derivatives with Pendant Alkoxy and Adamantyl Ester Groups, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 25, 2012, pp. 587-592. URL: <http://www.photopololymer.org>
- (3) Norihiko Sugie, Toshiya Takahashi, Kazuhiro Katayama, Isamu Takagi, Yukiko Kikuchi, Eishi Shiobara, Hiroyuki Tanaka, Soichi Inoue, Takeo Watanabe, Tetsuo Harada and Hiroo Kinoshita, Comparison of Resist Outgassing Characterization between High Power EUV and EB, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 25, 2012, pp. 617-624. URL: <http://www.photopololymer.org>
- (4) 渡邊健夫, 原田哲男, 木下博雄, EUV リソグラフィ研究開発センターにおけるリソグラフィ開発、クリーンテクノロジー、22、2012、pp. 1-5.
- (5) Yasuyuki Fukushima, Yuya Yamaguchi, Takafumi Iguchi, Takuro Urayama, Tetsuo Harada, Takeo Watanabe and Hiroo Kinoshita, Development of interference lithography for 22 nm node and below, Microelectric Engineering, 査読有, 88, 2011, pp. 1944-1947.
- (6) Yuya Yamaguchi, Yasuyuki Fukushima, Takeo Watanabe, Tetsuo Harada, and Hiroo Kinoshita, Transmission Grating Fabrication for Replicating Resist Patterns of 20 nm and Below, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 50, 2011, pp. 06GB10-1, 06GB10-1-4.
- (7) Naohiro Matsuda, Takeo Watanabe, Tetsuo Harada, Hiroo Kinoshita, Hiroaki Oizumi, and Toshiro Itani, In-situ Contamination Thickness Measurement by Novel Resist Evaluation System at NewSUBARU, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 50, 2011, pp. 06GB02-1, 06GB02-04.
- (8) Takuro Urayama, Takeo Watanabe, Yuya

- Yamaguchi, Naohiro Matsuda, Yasuyuki Fukushima, Takafumi Iguchi, Tetsuo Harada, and Hiroo Kinoshita, EUV Interference Lithography for 1X nm, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 23, 2011, pp. 681-686. URL: <http://www.photopolymers.org>
- (9) Hiroaki Oizumi, Kazuyuki Matsumaro, Satoshi Nomura, Julius Joseph Santillan, Toshiro Itani, Takeo Watanabe, Naohiro Matsuda, Tetsuo Harada, and Hiroo Kinoshita, Relationships between EUV resist outgassing and contamination deposition at Selete, Proc. SPIE, , 査読無, 7969, 2011, pp. 796921-1, 796921-10.
- (10) Y. Fukushima, Naoki Sakagami, Teruhiko Kimura, Yoshito Kamaji, Takafumi Iguchi, Y. Yamaguchi, Masaki Tada, Tetsuo Harada, Takeo Watanabe, and Hiroo Kinoshita, Development of Extreme Ultraviolet Interference Lithography System, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, 49, 2010, pp. 06GD06-1, 06GD06-5.
- (11) Daiju Shiono, Hideo Hada, Kazufumi Sato, Yasuyuki Fukushima, Takeo Watanabe, and Hiroo Kinoshita, Decomposition and Roughness Analysis of Chemically Amplified Molecular Resist for Reducing LWR, Jpn. J. Appl. Phys., 49, 査読有, 2010, pp. 06GF05-1, 06GF05-5.
- (12) Yuya Yamaguchi, Yasuyuki Fukushima, Takafumi Iguchi, Hiroo Kinoshita, Tetsuo Harada, and Takeo Watanabe, Fabrication process of EUV-IL transmission grating, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 23, 2010, pp. 681-686. URL: <http://www.photopolymers.org>
- (13) Yasuyuki Fukushima, Yuya Yamaguchi, Teruhiko Kimura, Takafumi Iguchi, Tetsuo Harada, Takeo Watanabe, and Hiroo Kinoshita, EUV interference lithography for 22 nm node and below, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 23, 2010, pp. 673-680. URL: <http://www.photopolymers.org>
- (14) Daiju Shiono, Hideo Hada, Kazufumi Sato, Yasuyuki Fukushima, Takeo Watanabe, and Hiroo Kinoshita, Fundamental Decomposition Analysis of Chemically Amplified Molecular Resist for below 22 nm Resolution, J. Photopolymer Sci. Technol., 査読有, 23, 2010, pp. 649-656. URL: <http://www.photopolymers.org>
- (15) 渡邊健夫, 木下博雄, EUVレジスト材料開発の現状と将来展望について、先端リソグラフィの展望、第19回光反応・電子用材料研究会講座 講演予稿集、高分子学会、査読有、2010、 pp. 14-17.
- [学会発表] (計 54 件)
- (1) 渡邊健夫, 原田哲男, 木下博雄, EUVL 研究開発センターにおける EUV レジストの開発 (基調講演)、アドバンスド・テクノロジー・プログラム (ATP)、新材料開発最前線、微細パターン化技術、日本化学会第93春季年会 (2013)、3. 22-3. 25, 2013、立命館大学びわこ・くさつキャンパス.
- (2) Hiroo Kinoshita, Takeo Watanabe, and Tetsuo Harada, Recent Activities on EUVL in NewSUBARU (Invited talk), 24th Microprocesses and Nanotechnology Conference, Oct. 20-Nov. 2, 2012, Kobe Meriken Park Oriental Hotel, Kobe, Hyogo, Japan.
- (3) Takeo Watanabe, Masaki Tada, Yukiko Kikuchi, Toshiya Takahashi, Kazuhiro Katayama, Norihiko Sugie, Isamu Takagi, Eishi Shiobara, Hiroyuki Tanaka, Soichi Inoue, Tetsuo Harada, and Hiroo Kinoshita, Contamination Evaluation Tool by an In-situ Spectroscopic Ellipsometer with an Exposure of High Power EUV (Invited talk), Technical Working Group of EUV Resist Outgassing, Sep. 30, 2012, Brussels Convention Center, Brussels, Belgium.
- (4) 渡邊健夫, 原田哲男, 木下博雄, 極端紫外線リソグラフィ技術開発の現状と今後の展望 (招待講演)、リソグラフィセミナー (I)、セミフォーラムジャパン2012、2012. 06. 13-06. 14、グランキューブ大阪 (大阪市) .
- (5) 渡邊健夫, EUVレジストの開発 ~20nm以下のパターン形成をめざして~ (招待講演)、第3回リソグラフィ次世代技術調査専門委員会、2011. 9. 16.、日本交通協会 特別談話室、東京.
- (6) Takeo Watanabe, Yuya Yamaguchi, Takuro Urayama, Naohiro Matsuda, Tetsuo Harada and Hiroo Kinoshita, EUV Interference Lithography for 1X nm, 2011 International Workshop on EUV Lithography, Jul. 13-17, 2011, Makena Beach and Golf Resort, Maui, Hawaii, USA.
- (7) Takeo Watanabe, EUVL toward 16 nm and

below (Invited), Interational Panel Symposium, The 28th International Conference of Photopolymer Science and Technology, June 21- July 24, 2011., Chiba Univ., Japan.

- (8) Takuro Urayama, Takeo Watanabe, Yuya Yamaguchi, Naohiro Matsuda, Yasuyuki Fukushima, Takafumi Iguchi, Tetsuo Harada, and Hiroo Kinoshita, EUV Interference Lithography for 1X nm, The 28th International Conference of Photopolymer Science and Technology, June 21- July 24, 2011, Chiba Univ., Japan.
- (9) 渡邊健夫, EUVL研究開発センターにおける研究開発 (招待講演)、微細化ブレイクセミナー(I)、セミフォーラムジャパン2011、2011.05.31-06.01.、グランキューブ大阪 (大阪市) .
- (10) 渡邊健夫、原田哲男、木下博雄、EUV リソグラフィ研究開発センターにおけるリソグラフィ開発 (招待講演)、アドバンスト・テクノロジー・プログラム(ATP)、次世代リソグラフィ、日本化学会第91春季年会、2011.03.26-29.、神奈川大学 (神奈川) .
- (11) Yuya Yamaguchi, Yakusyuki Fukushima, Takafumi Iguchi, Hiroo Kinoshita, Tetsuo Harada, and Takeo Watanabe, Fabrication process of EUV-IL transmission grating, The 27th International Conference of Photopolymer Science and Technology, June 22- July 25, 2010, Chiba Univ., Japan.
- (12) Yasuyuki Fukushima, Yuya Yamaguchi, Teruhiko Kimura, Takafumi Iguchi, Tetsuo Harada, Takeo Watanabe, and Hiroo Kinoshita, EUV interference lithography for 22 nm node and below, The 27th International Conference of Photopolymer Science and Technology, June 22- July 25, 2010, Chiba Univ., Japan.

[図書] (計1件)

- (1) 渡邊健夫 (分筆)、情報機構、レジストプロセスの最適化テクニック、～微細化・トラブル解消のための工程別対策および材料技術～、2011年出版、総ページ数 557 ページ (分筆部分 pp. 397～407) .

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.lasti.u-hyogo.ac.jp/sr-nanotechnology/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡邊 健夫 (WATANABE TAKEO)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・准教授

研究者番号：70285336

(2) 研究分担者

木下 博雄 (KINOSHITA HIROO)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・教授

研究者番号：50285334

原田 哲男 (HARADA TETSUO)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・助授

研究者番号：30451636

(3) 研究協力者

塩野 大寿 (SHIONO DAIJU)

東京応化工業株式会社

研究者番号：なし