

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 11 日現在

機関番号：32708

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03877

研究課題名(和文) レーザープラズマ光源EUV顕微鏡の開発と広視野マルチスケール観察への応用

研究課題名(英文) Lab-scale EUV microscope for wide-field and multi-scale observation

研究代表者

豊田 光紀 (TOYODA, Mitsunori)

東京工芸大学・工学部・准教授

研究者番号：40375168

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：研究代表者は、独自に見出した多層膜ミラー結像系の設計解に基づき結像型EUV顕微鏡を開発し、波長13.5nmにおいて、世界最高分解能30nmを実証した。本研究では、提案光学系とレーザープラズマ光源を組み合わせ、実験室規模のEUV顕微鏡を開発した。顕微鏡では、マイクロ-ナノ階層構造を持つ高分子材料などの試料を1-shot(10ナノ秒)露光し、直径200 μ mの広視野の一括マルチスケール観察を実現できた。今後は、EUV顕微鏡を学会・産業界で広く活用される実用システムとして位置づけたい。

研究成果の学術的意義や社会的意義

生体や先端機能性材料は、10nmから100 μ mの空間スケールで各構成要素が有機的に組み合わさる階層構造を成しており、その機能の理解・制御には、このマイクロ-ナノ階層構造の高速可視化技術が強く求められている。代表者の独創である多層膜ミラー対物鏡は、これらの試料を構成するマイクロ-ナノ階層構造を、1-shot露光で高速に可視化するキーデバイスであり、本研究により、高速・マルチスケール・リアルタイムEUV観察へのブレークスルーが実現すれば、EUVイメージングの当該分野への急速な展開が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The principal investigator has developed a full-field EUV microscope based on the reflective imaging system with the multilayer mirror objective, and demonstrated the world's highest spatial resolution of 30 nm at an operating wavelength of 13.5 nm. In this research, we have developed a laboratory-scale microscope by combining the proposed optical system and a laser-produced plasma light source. The EUV microscope can visualize a sample such as a polymer material having a micro-nano hierarchical structure within short exposure time of 10 nano second, and wide-field-of view observation with a diameter of 200 μ m was realized. In the future, the EUV microscope would be regarded as a practical system that is widely used in academic societies and industry.

研究分野：X線光学・応用光学

キーワード：EUV multi layer mirror

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

波長20nmから2nm程度の極紫外線(extream ultraviolet: EUV)は可視光より短波長であり、結像に用いれば原理的に数10nmの空間分解能が得られる。また、軽元素の内殻吸収端による元素コントラストを利用でき、特に、波長2.2-4.4nmの水の窓では厚さ数 μm の生体試料を染色・脱水処理せずに観察できる。このため、EUV顕微鏡は生体、高分子ポリマーや磁性材料等のナノスケール構造の動的変化をビデオ観察できる究極の光学顕微鏡として注目され、申請者は多層膜ミラーを用いる直入射型顕微鏡の開発研究を展開している。

申請者は独自に開発した全幅探索設計法を用い、2段結像による高倍率対物鏡を新たに考案した。光学系は3面のMo/Si多層膜ミラーからなる簡便な構成で、以下の高い実用性を持つ。

- 大きな開口数(NA=0.25)により、従来ゾンプレート方式の100倍明るい像が得られる。
- 軸外収差の補正により直径160 μm の広視野を30nm分解能でマルチスケール観察できる。
- 1500倍の高倍率によりCCDカメラと組み合わせれば試料をリアルタイム動画観察できる。

高倍率対物鏡の結像特性を明らかにするため、2011年より放射光を光源とするEUV顕微鏡の開発を行なった。7枚の多層膜ミラーからなる光学系は、EUVリソグラフィ用反射マスクの観察に特化した構成で、その心臓部には、上述の3面顕微対物ミラーを用いた。高倍率観測では、市販CCD検出器のサイズが不足し、観察領域が対物ミラー全視野の5%に制限されるものの、線幅30nmのテストパターンの明瞭な解像を確認できた(多層膜光学系として世界最高分解能)。提案光学系を実験室光源と組み合わせ、さらに、視野全面をカバーする大面積検出器を導入すれば、マシンタイムの制限のない実験室環境で、広視野と高分解能を両立したEUVマルチスケール観察を実現することができる。

2. 研究の目的

EUV顕微鏡を学会・産業界で広く活用されうる実用システムとして位置づけるため、本課題では、以下を研究した。

- 高分解能の実証を応用・実用化研究に進展させるため、提案する多層膜ミラー光学系の持つ、高速性(短い露光時間)、マルチスケール性(広い視野)、リアルタイム性を兼ね備える新しい顕微鏡システムを開発する。
 - 具体的な試料観察によるケーススタディを通して、これら3つの利点を検証・実証する。
- また、前述の空間分解能評価に用いた放射光光源は、輝度や安定性の面で優れるが、利用場所やマシンタイムに大きな制限がある。申請者は、近い将来の実用機の普及には、これらの制限のない、実験室光源によるEUV顕微鏡システムの構築が必須であると考えている。

このため、本研究では、多層膜ミラーEUV顕微鏡の利点を活かせる応用例として、高分子試料の無染色・リアルタイム観測などを想定し、顕微鏡システムの開発と応用研究を行った。具体的なテーマを以下に示す。

- (1) 全幅探索設計法により、実験室環境に好適なコンパクトな全長(1m)で、高倍率と広視野を両立する光学設計解を得る。
- (2) 設計解に基づいて複数の多層膜ミラーを作製し、顕微対物系および照明系を構成する。
- (3) 広視野を一括で撮像できる、大面積EUVCCD検出器を開発する。
- (4) 開発した光学系、大面積CCD検出器、および、実験室レーザープラズマ(LPP)光源を組み合わせ、実験室規模のEUV顕微鏡システムを建設する。
- (5) 想定する高分子試料を、LPP光源の1-shot(10ns)で露光し、直径200 μm の広視野をマルチスケール観察する。これにより、EUV顕微鏡の高い実用性を実証する。

3. 研究の方法

(1) 解析的全幅探索法による光学設計

放射光結像実験に用いた3面ミラー設計を拡張することで、実験室顕微鏡に必要なコンパクトな全長(1m)で、高倍率(x1500)と広視野(200 μm)を両立する光学設計解を、独自に開発した解析的設計法により見出した。対物ミラーは、2面对物鏡の後段に、2面望遠鏡付加した構成とした(図6左)。新規解の探索では、「対物鏡部」と「望遠鏡部」に分割し、以下の手法で実用解を得た。

Step1: 各々の部分系について、解析的設計法により、大域的に解を探索する。

Step2: 得られた各々の部分系の解を組み合わせた中から実用解を選択する。

これまでの2面・3面ミラー設計で得た知見を援用した迅速な開発により、見出した複数の実用解の中から、作製する対物ミラーの設計解を確定する。

(2) 大面積CCD検出器の開発

マルチスケール観察用対物ミラーの広視野(直径200 μm)を回折限界分解能(30nm)で一括観察することを可能とする、12000 \times 4000(50M)の画素数を持つ大面積CCD検出器を開発した。これまでの研究では、検出器開発で先行する天文学での例(すばる望遠鏡等)を参考とし、EUV用CCDチップの選定、および、暗電流低減のための冷却システムの検討を行った。本課題では、これま

での研究を基に、冷却システムの構築に加えて、真空槽内に設置するチャージアンプと、真空槽外に設置する冷却コントローラや電荷読み出し用の電子回路を作製した。研究期間の後半には、作製した電子回路を現有の真空槽と組合せ、大面積 CCD 検出器を構成した。

(3) 多層膜対物ミラーの開発

(1)で見出した光学設計に基づき、多層膜対物ミラーを開発した。開発は、曲面ミラー基板の研磨、多層膜の成膜、精密アライメント用ミラーホルダの開発、干渉計を用いた光軸調整、の4ステップが必要となる。曲面ミラー基板およびミラーホルダは、対物用と照明用ともに東北大・多元研技術室と共同で製作した。サブ nm の形状精度が必要な対物ミラー用基板は、3セットを作製し選別し使用した。多層膜の成膜には、現有のマグネトロンスパッタ装置を用いた。周期長・反射率は、現有の X 線回折計とレーザープラズマ光源軟 X 線反射率計(自作)により評価し、膜構造の最適化を図った。さらに、作製した多層膜ミラーと精密ホルダを組合せ構成した対物ミラーは、100pm の絶対精度を持つ点回折干渉計(自作)を用いて光軸調整を行なった。計測波面からミラーのミスアライメントを予測し、ミラーホルダにフィードバックし精密調整を行い、波長 13nm での回折限界結像に必要な、波面収差の極小化を実現した。

(4) EUV 顕微鏡システムの構築

現有の LPP 光源、試料ステージ、および、上記で開発した、対物ミラー、照明光学系、大面積 CCD 検出器を、新規作製の真空槽に組み込み、EUV 顕微鏡システムを構成した。真空槽は、28 年度後半に仕様が決まった部分から設計を開始し、29 年度中旬には、多元研・機械工場において作製を行なった。顕微鏡システムの構築には、上述した構成要素に加えて、組み立てに様々な治工が必要となる。これまで開発した放射光顕微鏡システムでの経験を生かし、多元研技術室・機械工場と協力し、治工具も含めて設計・製作を行い、顕微鏡システムの構築を着実に進めた。

(5) 高分子試料のマルチスケール EUV 結像実験

標準試料(透過型テストパターン)の観察を初めに行い、構成した EUV 顕微鏡の空間分解能やコントラスト特性(MTF)の実測を行い、設計性能が得られているか確認を行なった。

高分子フィルムの観察では、高分子材料の軟 X 線イメージングに実績のある分担者と共同で、試料切片厚さや観察波長等の試料準備・観察条件の最適化検討を行なった。

4. 研究成果

以下に、研究成果の概要を示す。

(1) 解析的全幅探索法による結像光学系設計

高倍率(x1500)と広視野(200 μm)を両立する光学設計解を、解析的設計法により大域的に探索した。Schwarzschild ミラーに凹面付加拡大ミラーを組み合わせた 2 段拡大系では、凹面ミラーが球面するとき、僅かな非点収差が残留する一方で、円錐曲面を導入すれば、非点収差を含めザイデル収差のうち 4 つが補正できることを見出した。

(2) 大面積 CCD 検出器の開発

H28 年度には、真空槽内に設置するチャージアンプ回路と、真空槽外に設置するクロック駆動、電荷読み出し用の電子回路を設計・作製した。さらに、スターリング冷却器をシステムに付加する改造を多元研技術室と共同で行い、十分な冷却効果が得られることを実証した。



(3) 多層膜対物ミラーの開発、および、(4) EUV 顕微鏡システムの構築

3 面ミラーの最適光学設計に基づき、多層膜対物ミラーを開発した。また、現有の LPP 光源、試料ステージ、および、上記で開発した、対物ミラー、照明光学系、大面積 CCD 検出器を、新規作製の真空槽に組み込み、EUV 顕微鏡システムの構成を進めた。構築した顕微鏡の全景を上に表示。R1 年度初頭には、研究代表者の異動に伴い、開発した EUV 顕微鏡システムや周辺機器を、東北大学から東京工芸大学に移設した。移設後、真空槽、レーザープラズマ光源、および、試料ステージ等の組み立て・調整を行い、顕微鏡システムの構築を引き続き行った。その後、標準試料の透過観察を行い、構成した EUV 顕微鏡の空間分解能やコントラスト特性を実測し、概ね設計性能が得られることを確認した。

(5) 高分子試料のマルチスケール EUV 結像実験

高分子フィルムの観察では、標準試料として PS/PMMA 等、種々のポリマーブレンドを取り上げ、EUV 像を観察し良好な無染色コントラストが得られることを確認できた。さらに、像コントラストの生成モデルをもとに定量的な像解釈を行い、ポリマーブレンドで観測される像コントラストは、主に、試料に含まれる酸素の構成比により生じていることを明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 M. Toyoda, Y. Tamaru, S. Mori, K. Sawada, Y. Fu, E. J. Takahashi, A. Suda, F. Kannari, K. Midorikawa, M. Yanagihara	4. 巻 202
2. 論文標題 Multilayer Mirrors for Focusing Objective in 40-nm Wavelength Region	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Springer Proceedings in Physics	6. 最初と最後の頁 287-290
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1007/978-3-319-73025-7_42	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mitsunori Toyoda, Kota Kuramitsu, Mihiro Yanagihara	4. 巻 405
2. 論文標題 Imaging properties of an extreme ultraviolet microscope objective with reduced Fresnel number	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Optics Communications	6. 最初と最後の頁 312-317
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1016/j.optcom.2017.08.031	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mitsunori TOYODA, Ryo SUNAYAMA, Mihiro YANAGIHARA	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 LOW-ORDER ABERRATIONS CORRECTION OF EXTREME ULTRAVIOLET IMAGING OBJECTIVE WITH DEFORMABLE MULTILAYER MIRRORS	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Proceedings of the MEDSI 2016 Conference	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 豊田光紀
2. 発表標題 回折限界EUV顕微鏡の開発とポリマー試料のモルフォロジー解析への応用
3. 学会等名 第14回X線結像光学シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 豊田光紀
2. 発表標題 30nm分解能を実現する実験室EUV顕微鏡の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 マルチディメンジョナルトモグラフィ研究部会「様々な量子ビームによる3次元イメージング」
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Mitsunori Toyoda, Ryo Sunayama, Mihiro Yanagihara
2. 発表標題 Point Diffraction Interferometer for Inspection of High-Magnification Objective for Extreme Ultraviolet Microscopy
3. 学会等名 The 61st International Conference on Electron, Ion, and Photon Beam Technology and Nanofabrication (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Mitsunori Toyoda
2. 発表標題 Extreme Ultraviolet Microscope Based on Multilayer Mirror Optics with Diffraction-Limited Spatial Resolution
3. 学会等名 The 24th General Congress of the International Commission for Optics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 金子 明誉, 豊田 光紀, 高田 昌樹
2. 発表標題 マグネトロンスパッタに適用できる多層膜ミラーの周期長分布制御機構の開発
3. 学会等名 第77回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 金子 明誉, 豊田 光紀, 高田 昌樹
2. 発表標題 マグネトロンスパッタに適用できる多層膜ミラーの周期長分布制御機構の開発(2)
3. 学会等名 第71回応用物理学会東北支部学術講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Mitsunori Toyoda, Ryo Sunayama, Mihiro Yanagihara
2. 発表標題 LOW-ORDER ABERRATIONS CORRECTION OF EXTREME ULTRAVIOLET IMAGING OBJECTIVE WITH DEFORMABLE MULTILAYER MIRRORS
3. 学会等名 9th edition of the Mechanical Engineering Design of Synchrotron Radiation Equipment and Instrumentation (MEDSI) conference (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Mitsunori Toyoda
2. 発表標題 Design, fabrication, and test of extreme ultraviolet microscope with 30-nm spatial resolution
3. 学会等名 Physics of X-Ray and Neutron Multilayer Structures Workshop 2016 (国際学会)
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	大東 琢治 (OHIGASHI Takuji) (50375169)	分子科学研究所・極端紫外光研究施設・助教 (63903)	