

研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20760017  
 研究課題名（和文） 軟 X 線ブロードバンド多層膜光学素子の非等周期構造設計  
 および精密作製法の開発  
 研究課題名（英文） Aperiodic design and development of soft X-ray broadband multi layer  
 mirror optics  
 研究代表者  
 津留 俊英 (TSURU TOSHIHIDE)  
 東北大学・多元物質科学研究所・助教  
 研究者番号：30306526

## 研究成果の概要（和文）：

軟 X 線波長範囲で高反射帯をブロードバンド化した各種光学素子を実用化するために、数値最適化手法を用いた多層膜構造の設計法とブロードバンド多層膜光学素子の作製技術の開発を行った。多層膜の層毎に異なるナノメートル膜厚と場所毎に異なる膜厚分布を精密に制御した非等周期構造が形成できる多層膜成膜装置を構築し、ブロードバンド軟 X 線多層膜鏡を作製した。また、広い波長領域で使用できる反射型多層膜偏光子と炭素の窓用多層膜鏡の非等周期膜厚構造解を得た。

## 研究成果の概要（英文）：

In the soft X-ray wavelength region, design method by using optimization algorithms and fabrication method were developed to broadening the reflection passband of multilayer mirror optics. Fabrication system which can control aperiodic period thickness and thickness distribution was realized. Aperiodic designs of broadband multilayer polarizer for the EUV and mutliayer mirror for the carbon window were determined.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2009 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

## 研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・薄膜・表面界面物性

キーワード：超薄膜、多層膜、軟 X 線、広帯域、光学素子、ミラー

## 1. 研究開始当初の背景

軟 X 線領域では、物質の屈折率が 1 に近く、バルク表面による直入射反射率は 1%にも満たないため、強め合いの干渉効果を利用した

多層膜で反射を得る。多層膜構造は、可視光に用いる誘電体多層膜ミラーと同様で使用する波長と入射角で反射率が最大となるように 2 種類の物質の膜厚を選択し、それらを

交互に周期的に積層したものである。高反射率を得るには、吸収による光の減衰を極力減らすため消衰係数がともに小さく、屈折率の差が大きな物質の組み合わせを選び多層膜を構成する。適切な膜厚で等周期構造を十分積層すれば最大反射率が得られる。ただし、膜の吸収のために最大反射率は 100%には達しない。入射角を  $\phi$ 、反射ピーク波長を  $\lambda$  とすると、物質の軟 X 線に対する屈折率はほぼ 1 であるから、周期膜厚  $D$  とこれらには近似的にブラッグの式と同等な  $2D\cos\phi = \lambda$  が成り立つ。従って、高い反射率を得るためには、使用波長の 1/4 程度のナノメートル膜厚で、数 10 から数 100 層積層した多層膜構造が必要となる。また、多層膜を曲面にスパッタ成膜して結像鏡とするには、入射光の入射角依存性を満たすように曲面内で周期膜厚分布を制御しなければならない。多層膜鏡を偏光子として機能させるには、p 偏光反射率が極小となる疑ブリュスター角が  $45^\circ$  付近にあることを利用する。多層膜の周期膜厚を調整し、この角度で反射率が得られるようにすると消光率  $10^{-3}$  程度の反射型多層膜偏光子が得られる。

これら等周期多層構造による光学素子は、優れた反射特性を示すが、反射増加膜であることから適用波長が限定される。また、軟 X 線顕微鏡など多層膜鏡を用いて光学系を構成するには、複数枚の鏡が必要で、これらの反射ピーク波長を精密に一致させなければならず高精度な膜厚制御が要求される。

研究代表者は、数値最適化手法を多層膜の膜厚設計法に適用し、従来型の等周期構造を非等周期構造とすることで反射波長帯域を大幅に拡大できることを見出した。ブロードバンド多層膜鏡の実用化のためには、ナノメートル膜厚とその分布を制御して非等周期構造とする高精度な成膜装置の開発が求められる。

ブロードバンド多層膜結像鏡や偏光子の実現は、軟 X 線領域の蛍光顕微鏡や偏光顕微鏡の開発が期待できる。また、ブロードバンド偏光子を用いた軟 X 線分光エリプソメトリーなど新しい計測法への応用展開が予想される。ブロードバンド化の設計および精密作製技術は波長を問わず様々な光学素子に適用できることから多彩な応用が見込まれる。

## 2. 研究の目的

本研究では、波長 3 nm から 20 nm 程度の軟 X 線波長範囲で高反射帯をブロードバンド化した各種光学素子を実用化するために、

- ・ 数値最適化手法を用いた多層膜構造の設計法と、非等周期多層膜鏡の作製法を確立する
- ・ ブロードバンド多層膜結像鏡やブロードバンド偏光子など各種の実用的な軟 X 線

ブロードバンド多層膜光学素子を開発する

ことを目的とする。実用的な軟 X 線ブロードバンド多層膜光学素子を作製するためには、高い反射率や高い偏光能を持つ膜厚設計解の探索とナノメートルの膜厚をピコメートル精度で精密に制御して非等周期多層構造を形成する技術が不可欠である。

多層膜の層毎に異なる膜厚を精密制御し非等周期構造を形成できる成膜装置を構築しブロードバンド多層膜光学素子を開発する。

## 3. 研究の方法

(1) 数値最適化手法を用いたブロードバンド多層膜構造の設計法の開発

軟 X 線多層膜鏡は 2 種類の物質をそれぞれ波長の 1/4 程度の厚さで数 10 から数 100 層積層した反射増加膜であり、数 10% の高い反射率が得られる。多層膜鏡は強め合いの干渉効果によって反射率を得るため、その反射帯域は狭く  $\lambda/\Delta\lambda$  ( $\lambda$ : 反射ピーク波長、 $\Delta\lambda$ : 半値幅) は数 10 から数 100 に達し適用波長が限定される。波長マッチング精度の低減や分光計測など多層膜鏡の応用展開を目指し、汎用的な最適化アルゴリズムを多層膜の膜厚設計に適用し高反射帯の広帯域化を行う。

広帯域多層膜の膜厚構造探索のために以下の評価関数  $MF$  を定義する。

$$MF = \frac{1}{m} \sum_{k=1}^m (R_k - R_k^T)^2 \quad (1)$$

ここで、 $m$  は設定した波長域で計算に使用する波長の総数、 $R_k$  は反射率、 $R_k^T$  は目標とする反射率である。汎用的な数値最適化アルゴリズムを用いて  $MF$  が最小となる膜厚を決定する。

(2) 軟 X 線ブロードバンド多層膜光学素子作製装置の開発

ブロードバンド光学素子作製のためには、例えば、波長 13 nm 付近の波長域では 0.01 nm オーダーの、波長 3 nm 付近では 0.001 nm オーダーの膜厚を精密に制御して非等周期構造を形成しなければならない。現有の多層膜成膜装置で非等周期構造とするには、層毎に成膜時間を手入力しなければならず、精密な膜厚制御は不可能である。そこで本研究では、0.01 秒の精度で成膜時間をリアルタイム制御するためにリアルタイム OS を使用したコンピューター制御方式のコントローラーを作製する。多層膜鏡の反射は、強め合いの干渉特性として波長と入射角依存性を持つ。光を結像させるには光線の入射角が 1 枚の鏡内で変化するから、図 1 に示すように曲面基板面内で所定の多層膜周期長分布に制御し反

射波長を一致させることが不可欠であり、基板前面に配置したシャッターの開閉速度を制御して所定の分布を形成する。開発するコントローラーは、シャッター制御機構(図2)の速度関数を層毎に計算し分布制御可能とする。

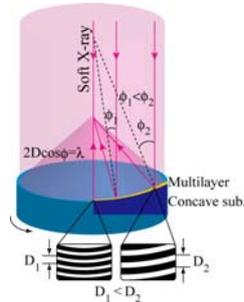


図1. 多層膜鏡の異なる位置における光の反射の様子。

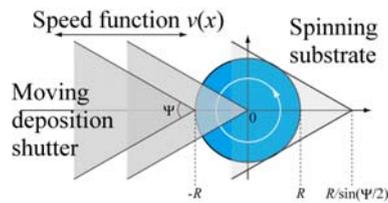


図2. シャッター制御機構による多層膜鏡の膜厚分布制御。

#### 4. 研究成果

##### (1) 軟X線ブロードバンド多層膜光学素子設計法の開発

ブロードバンド多層膜の膜厚構造は(1)式で定義した評価関数  $MF$  が最小となる膜厚構造を数値最適化アルゴリズムで探索し、決定する。最適化アルゴリズムとして Simplex 法、準 Newton 法、Gradient 法を用いた。設計時には、2つの物質の屈折率と消衰係数、入射角、目標とする反射率、初期膜厚をそれぞれ入力する。設計が完了すると、膜厚構造と反射特性が直ちに描画できる。①と②に波長 13 nm 用のブロードバンド多層膜鏡と偏光子を、③に波長 4 nm の炭素の窓用多層膜鏡の膜厚構造と反射特性を示す。計算時の初期膜厚は全て等周期構造とした。

##### ① 波長 13 nm 用ブロードバンド Mo/Si 多層膜鏡の設計

波長 13 nm 用 40 等周期 Mo/Si 多層膜 (Mo: 2.69 nm, Si: 4.51 nm) を初期構造として波長 13 nm から 15 nm の波長域で入射角  $5^\circ$  で反射率 35% が得られる構造の探索を行った。最適化アルゴリズムによって異なる非等周期構造を持つが、実現可能な膜厚構造が得られた。また、得られた膜厚構造を用いて分光反射率計算を行ったところ、設定した波長域で目標の反射率が得られることが分かった。

図3に Simplex 法で得た膜厚分布を示す。

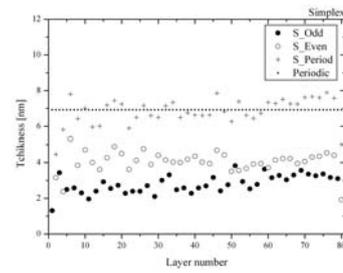


図3. ブロードバンド Mo/Si 多層膜鏡の非等周期膜厚構造。

##### ② 波長 13 nm 用ブロードバンド Mo/Si 多層膜偏光子の設計

波長 13 nm から 20 nm で偏光子として機能する Mo/Si 多層膜の膜厚設計を行った。図4に得られた膜厚構造を、図5にその反射特性を示す。

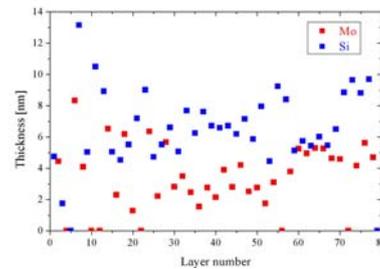


図4. ブロードバンド Mo/Si 偏光子の非等周期膜厚構造。

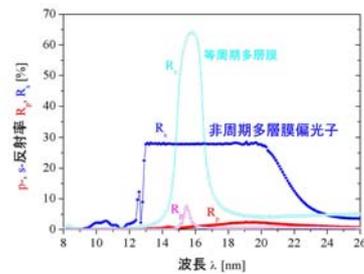


図5. ブロードバンド Mo/Si 多層膜偏光子の反射特性計算値。

長波長領域で偏光能がやや低下するが、設定した波長域で良好な偏光特性を示す膜厚構造が得られた。

##### ③ 波長 4 nm 用ブロードバンド Cr/C 多層膜鏡の設計

炭素の窓用多層膜として Cr/C を物質対として選択し、波長 4.4 nm から 4.5 nm で反射率 20% を目標値として Gradient 法を用いて膜厚構造探索を行った。図6に得られた膜厚構造を、図7に 250 等周期構造と 250 非等周期構造の反射特性を示す。非等周期構造で反射率 18% で反射帯域を約 3 倍に拡大した反射特

性が得られる。

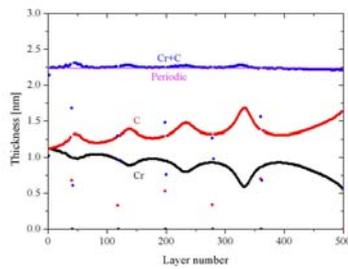


図 6. 炭素の窓用 250 周期ブロードバンド Cr/C 多層膜の非等周期膜厚構造

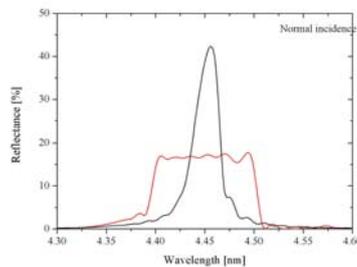


図 7. 炭素の窓用 Cr/C 多層膜の反射特性。黒は等周期、赤は非等周期構造の反射特性を示す。

#### (2) 非等周期多層膜成膜装置の開発

軟 X 線多層膜鏡は強め合いの干渉効果によるものであるから、膜厚の制御に対する要求は、必要な層数  $N$  が多いほど厳しい。成膜時の膜厚累積誤差が最終層までで  $1/2$  層以内でなければ、弱め合いの干渉が生じる。従って、膜厚精度は  $1/(2N)$  が要求される。炭素の窓や水の窓領域の多層膜には数 100 周期を超える積層が必要であるから、 $0.001$  nm 精度の膜厚制御が要求される。成膜速度はおおよそ  $1$  nm/min 程度であるから、 $100$  msec 精度の制御が求められる。現有のイオンビームスパッタリング多層膜成膜装置は、シーケンサーを使用し、 $100$  msec 精度で物質の切り替えを行っている。ブロードバンド化のためには、非等周期構造の形成が必須で、また、曲面鏡全面で反射波長を揃えるためには、周期長の分布制御も行わなければならない。本研究ではこれらをコンピューター制御で行うこととした。現在最も汎用的な OS である Windows では時間精度を保障できないことから、本研究ではリアルタイム OS である LabView real-time を採用し  $10$  msec の時間精度でこれらを制御できるものとした。膜厚構造の入力やシャッター制御関数の入力 Windows OS 上で行い、LAN 接続された制御用 PC に各パラメータを送信する。成膜物質切替とシャッター駆動に加えて、基板の回転とシャッターの位置制御も行うことが可能な構成とした。

改良した装置の制御精度の検証として、等周期 Mo/Si 多層膜を作製し X 線回折法で周期性を評価したところ、シーケンサー方式と同等であることが確認できた。

次に、(1)-①で決定した波長  $13$  nm 用のブロードバンド Mo/Si 多層膜の作製を行った。Photon Factory BL-12A で計測した軟 X 線分光反射率を図 8 に示す。波長  $14.5$  nm 付近の反射率の低下は成膜速度の経時変化によるものと考えられる。反射率は設計値の  $35\%$  に及ばないものの設定した波長域で等周期構造の  $2$  倍広い半値幅を実現した。

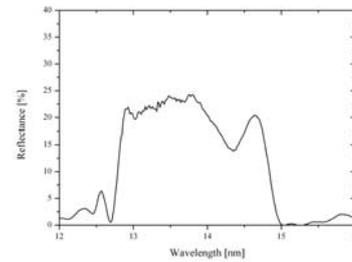


図 8. Simplex 法で設計した波長  $13$  nm 用ブロードバンド Mo/Si 多層膜鏡の軟 X 線実測反射率

本研究で開発した多層膜設計法と多層膜成膜装置によって、様々な軟 X 線ブロードバンド多層膜光学素子の開発が可能となった。また、非等周期構造の形成に加え、多層膜鏡の作製自由度と膜厚制御精度の向上によってこれまでは作製困難だった非球面形状の膜形成と基板面内で膜厚が一方向に傾斜する分光用多層膜鏡の試作に成功した。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

1. 津留俊英, 羽多野忠, 原田哲男, 山本正樹, 軟 X 線顕微鏡用精密多層膜ミラーの開発, 査読有, 放射光, (2010), 印刷中
2. Eva Majkova, Matej Jergel, Masaki Yamamoto, Toshihide Tsuru, Stefan Luby, Peter Siffalovi, Advanced nanometer-size structures, Design and in-situ fabrication control of X-EUV mirrors, 査読無, Acta Physica Slovaca, 57 (6), 911-1074 (2008)

[学会発表] (計 2 件)

1. 羽多野忠, 原田哲男, 豊田光紀, 津留俊英, 山本正樹, 膜厚分布制御成膜法を応用した新機能 X 線ミラーの開発, 第 10 回 X 線結像光学シンポジウム, 2009 年

- 11月6日，筑波
2. 津留俊英，羽多野忠，原田哲男，山本正樹，軟X線顕微鏡用精密多層膜ミラーの開発，軟X線顕微鏡用精密多層膜ミラーの開発，日本放射光学会第一回若手研究会「X線ナノ集光技術研究会」，2009年8月11日，大阪

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

津留 俊英 (TSURU TOSHIHIDE)  
東北大学・多元物質科学研究所・助教  
研究者番号：30306526