

文章编号 1004-924X(2018)10-2395-12

极紫外宽带多层膜反射镜离散化膜系的设计与制备

匡尚奇^{1*}, 李 硕¹, 杨海贵², 霍同林³, 周洪军³

(1. 长春理工大学 理学院, 吉林 长春 130022;

2. 中国科学院 长春光学精密机械与物理研究所 光学系统先进制造技术重点实验室, 吉林 长春 130033;

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:极紫外(EUV)宽带多层膜的光谱性能对膜厚控制精度要求较高,仅由时间控制膜厚的镀膜系统难以满足其精度控制要求。本文提出了基于进化算法的宽带 EUV 多层膜离散化膜系设计方法,与传统膜系设计相比,离散化膜系所制备多层膜具有更为优良的 EUV 反射光谱性能。为验证离散化膜系设计在宽带 EUV 多层膜研制中的优越性,采用磁控溅射方法对具有离散化膜系的宽带多层膜反射镜进行了制备和测试。测试结果表明:研制的宽角度多层膜反射镜可实现入射角带宽为 $0^{\circ}\sim 17^{\circ}$,高于 41% 的反射率;研制的堆栈宽角度多层膜反射镜可实现入射角带宽为 $0^{\circ}\sim 18.5^{\circ}$,高于 35% 的反射率;研制的宽光谱多层膜反射镜可实现波长带宽为 12.9~14.9 nm,高于 21% 的反射率。

关键词:多层膜设计;极紫外;离散化设计;宽带多层膜

中图分类号:O484 **文献标识码:**A **doi:**10.3788/OPE.20182610.2395

Design and fabrication of EUV broadband multilayer mirrors with discrete thicknesses

KUANG Shang-qi^{1*}, LI Shuo¹, YANG Hai-gui², HUO Tong-lin³, ZHOU Hong-jun³

(1. School of Science, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China;

2. Advanced Manufacturing Technology for Optical Systems Laboratory, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;

3. National Synchrotron Radiation Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230029, China)

*Corresponding author, E-mail: physicskuang@sina.com

Abstract: Efficient broadband reflective Extreme Ultraviolet (EUV) multilayers require superior control and precision of layer thickness. A solely time-controlled deposition system can not meet the requirements of high accuracy. In this paper, we present a scheme for the design of broadband multilayers with discrete thicknesses based on an evolutionary algorithm. This method greatly improves the reflectivity curve compared to that of conventional multilayer mirrors without discrete thicknesses. To verify the superiority of the design, the broadband multilayers were deposited using a magnetron sputtering system. The EUV measurements reveal that the deposited aperiodic broad angular multilayers

收稿日期:2018-01-31;修订日期:2018-03-30.

基金项目:国家自然科学基金青年基金资助项目(No. 61405189);吉林省科技发展计划资助项目(No. 20150101019JC, 20170312024ZG)

exhibits reflectivity values greater than 41% over an angle of incidence range of $0-17^\circ$ for a fixed wavelength of 13.5 nm, the broad angular multilayers in four different stacks exhibits reflectivity values greater than 35% with a wide angular bandpass over an angle of incidence range of $0-18.5^\circ$ for a fixed wavelength of 13.5 nm, and the broadband multilayer mirrors exhibits reflectivity values greater than 21% for wavelengths ranging between 12.9–14.9 nm for a fixed angle of incidence of 3° . This study demonstrates a great potential for the application of discrete design in the fabrication of EUV broadband multilayers with high accuracy.

Key words: multilayer design; extreme ultraviolet; discrete design; broadband multilayer

1 引言

极紫外(Extreme Ultraviolet, EUV)多层膜反射镜是 EUV 光学系统的重要光学元件,可实现 EUV 波段的高反射率,在 EUV 天文学、EUV 光刻和 EUV 光谱学等领域得到了广泛应用^[1-3]。近年来,在国内外研究人员的不断努力下,周期 EUV 多层膜在 13.5 nm 附近的反射率可实现的最高水平达 70.15%^[4]。周期多层膜反射镜虽能实现较高的 EUV 反射率,但其干涉特性导致入射角带宽一般仅为 9° ,且入射光波长局限于 13.5 nm 附近,具有明显的局限性。这一问题的解决方法之一是梯度多层膜反射镜的研制,即精确控制多层膜的横向膜厚分布。但是梯度多层膜反射镜只能于高精度且昂贵的镀膜设备中镀制,且只能应用于轴对称的光学系统中^[5]。另一种解决方法是宽带多层膜的设计,其镀制过程较梯度多层膜反射镜简便,而且宽带 EUV 多层膜反射镜能够实现较宽的反射光谱带宽或入射角带宽,同时具有较高的反射率。因此,宽带多层膜是近年来国内外的研究热点^[6-9]。2000 年, Wang 和 Michette 使用非周期多层膜设计优化得到波长带宽为 13~19 nm 的宽带反射多层膜^[10]。2002 年, Yulin S A 等设计并镀制了三堆栈宽角度多层膜,测量结果表明可实现的入射角带宽为 $0^\circ\sim 20^\circ$,反射率高于 30%^[11]。2017 年, Kuang 等为降低镀制过程中膜厚随机误差对多层膜光谱性能的影响,将多目标进化算法成功应用于多层膜的设计中,实现了宽带多层膜的鲁棒性设计^[12]。

针对宽带 EUV 多层膜的膜系设计,一般采用搜索优化算法进行设计,其中普遍采用的膜系设计算法有非线性最小二乘(Non-linear Least

Square, NLS)法、模拟退火算法(Simulated Annealing, SA)和进化算法(Evolutionary Algorithm, EA)。其中 NLS 算法是典型的局部搜索算法,虽然求解效率高,但在一定程度上对初始膜系的光谱性能要求较高,不易求得全局最优解;SA 是一种全局搜索算法,对目标函数的要求不高,实现过程简单方便,但存在着收敛速度慢、运行时间长的弊端^[13];EA 是一种全局搜索算法,容易跳出局部极值并且搜索从群体出发,具有潜在的并行性,而且求解效率高。然而,传统基于 EA 的膜系设计膜厚为搜索区间的任意值,其设计膜系对制备过程中的膜厚控制精度要求较高^[14-15]。

在 EUV 多层膜反射镜的制备方面,常用的方法有电子束蒸发、离子束溅射和磁控溅射等^[16-18]。其中,蒸镀方法制备多层膜时,其膜厚沉积速率波动较大,所镀多层膜结构密度会变差,一般需要离子束辅助沉积;采用离子束溅射方法制备多层膜时,虽然膜层粒子的能量较高,膜层较为致密,但膜层间的扩散较大;磁控溅射方法镀制出的膜层比较致密,沉积速率较为稳定,膜厚可由沉积时间控制,操作较为简便,更适于 EUV 多层膜的制备^[19]。但是,在采用仅由时间控制(控制精度为 1 s)且沉积速率可观的设备镀制多层膜反射镜时,传统设计膜系的镀制精度并不高,只能根据各靶位的溅射速率近似为可镀膜系。与理论设计膜系的光谱性能相比,可镀多层膜膜系由于膜厚近似误差出现明显的光谱性能恶化。

为了解决上述问题,本文提出了离散化宽带多层膜膜系设计方法,并将该方法分别应用于宽角度和宽光谱 Mo/Si 多层膜膜系设计和制备之中。与传统近似化多层膜膜系设计相比,宽角度和堆栈宽角度离散化设计膜系的光谱性能均能达到设计目标,而且宽光谱离散化设计膜系的光谱

性能与设计目标也很吻合。

2 宽带 EUV 多层膜离散化膜系设计方法

本文基于多层膜设计原理^[20],在考虑扩散层的情况下对 Mo/Si 宽带多层膜进行离散化膜系设计,其中离散化膜系是指膜系中各膜层的几何厚度为以相应靶位沉积速率为公差的一系列离散化数值。Mo/Si 多层膜周期设为 49,其膜层密度、界面粗糙度、扩散层及氧化层厚度等参数均由表征 Mo/Si 周期多层膜结果获得^[21-24]。同时由于 Mo 层和 Si 层之间的扩散作用较弱,故认为各周期中扩散层 MoSi₂ 的膜厚不变,包括 Mo 层在 Si 层的扩散厚度 $d_{\text{Mo on Si}} = 1.6 \text{ nm}$ 及 Si 层在 Mo 层的扩散厚度 $d_{\text{Si on Mo}} = 0.2 \text{ nm}$ 。在时间控制膜厚且控制精度为 1 s 的镀膜系统对沉积速率进行定标,得各靶位的沉积速率为 $v_{\text{Mo}} = 0.19 \text{ nm/s}$ 和 $v_{\text{Si}} = 0.32 \text{ nm/s}$ 。以 Mo 和 Si 的膜厚沉积时间为优化参数,基于 EA 结合各靶位的沉积速率建立离散化多层膜膜系设计算法,具体实施步骤如下:

步骤一:输入初始参数值。参数包括:种群规模 $N = 100$,初始进化代数 $g = 1$,个体基因位数 $n = 98$,交叉概率 $P_c = 0.9$,变异概率 $P_m = 0.1$,进化的最大代数为 5 000。各膜层膜厚的合理限制有利于提高膜系设计的效率和精度,本文将宽角度 Mo/Si 多层膜中 Mo 层沉积时间(单位为 s)的离散化搜索范围设定为 $[3, 5]$,Si 层沉积时间(单位为 s)的离散化搜索范围设定为 $[6, 10]$ 。与之相应,宽光谱 Mo/Si 多层膜中 Mo 层沉积时间(单位为 s)的离散化搜索范围设定为 $[2, 6]$,Si 层沉积时间(单位为 s)的离散化搜索范围设定为 $[3, 10]$ 。需进一步指出,离散化设计意味着所采用的沉积时间为相应搜索范围中的整数时间,因为镀膜系统的时间控制精度为 1 s。

步骤二:对膜层沉积时间采用实数编码,随机生成表征多层膜膜层沉积时间的初始种群 $G(g)$ 。

步骤三:依据适应度函数计算 $G(g)$ 中各个体的适应度,并保存最优膜层沉积时间个体。在个

体适应度计算过程中,对膜厚离散化设计,输入各膜层膜厚以沉积速率为公差的离散化膜系。在此将 Mo 膜与 Si 膜每膜层的膜厚转化为沉积速率的设计时间整数倍与成膜膜厚之和,即其中 Si 层的膜厚为:

$$d_{\text{Si}} = d_{\text{Si}}' + \text{round}(t_{\text{Si}}) \cdot v_{\text{Si}}, \quad (1)$$

而 Mo 层的膜厚为:

$$d_{\text{Mo}} = d_{\text{Mo}}' + \text{round}(t_{\text{Mo}}) \cdot v_{\text{Mo}}, \quad (2)$$

式中: d_{Si}' 为 Si 层的成膜膜厚,由周期多层膜表征计算得 $d_{\text{Si}}' = 1.52 \text{ nm}$; v_{Si} 为 Si 靶位的沉积速率; d_{Mo}' 为 Mo 层的成膜膜厚, $d_{\text{Mo}}' = 1.38 \text{ nm}$; v_{Mo} 为 Mo 靶位的沉积速率; $\text{round}(\cdot)$ 表示四舍五入取整函数; t_{Si} 和 t_{Mo} 分别为 Si 和 Mo 膜层的沉积时间。

宽角度 Mo/Si 多层膜设计采用的适应度函数为:

$$MF_1 = \int_{\varphi_{\min}}^{\varphi_{\max}} [R_0(\varphi) - R(\varphi)]^2 d\varphi, \quad (3)$$

其中: φ 为入射角, $R_0(\varphi)$ 为目标反射率, $R(\varphi)$ 为理论计算的反射率^[4],入射光波长为 13.5 nm,入射角带宽为 $\varphi_{\max} - \varphi_{\min}$ 。宽光谱 Mo/Si 多层膜设计采用的适应度函数为:

$$MF_2 = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_{\max}} [R_0(\lambda) - R(\lambda)]^2 d\lambda, \quad (4)$$

其中: λ 为入射光波长, $R_0(\lambda)$ 为目标反射率, $R(\lambda)$ 为理论计算的反射率,入射角为 3° , $\lambda_{\max}$ 和 $\lambda_{\min}$ 分别为入射光谱的光波长上下限,其中 $\lambda_{\min} = 13 \text{ nm}$, $\lambda_{\max} = 15 \text{ nm}$ 。

步骤四:判断是否满足终止条件(达到设计要求或最大进化代数),若满足,则停止,输出最优多层膜各膜层的沉积时间;若不满足,则进行步骤五;

步骤五:交叉操作更新表征多层膜膜系沉积时间的种群 $G(g)$,采用模拟二进制交叉操作^[25]。设两父代个体的第 i 个染色体为 X_{p1} 和 X_{p2} ,则子代个体的相应染色体经交叉操作为:

$$X_c = \begin{cases} 0.5 \cdot [(1+\beta_i) \cdot X_{p1} + (1-\beta_i) \cdot X_{p2}], & \text{rand} < 0.5 \\ 0.5 \cdot [(1+\beta_i) \cdot X_{p2} + (1-\beta_i) \cdot X_{p1}], & \text{rand} \geq 0.5 \end{cases}, \quad (5)$$

其中 rand 为 $[0, 1]$ 区间内的一个随机数,

$$\beta_i = \begin{cases} (2u_i)^{\frac{1}{\gamma_c+1}}, & u_i \leq 0.5 \\ \left(\frac{1}{2(1-u_i)}\right)^{\frac{1}{\gamma_c+1}}, & u_i > 0.5 \end{cases}, \quad (6)$$

式中: η_c 为交叉算子, 本文涉及的算法中 $\eta_c = 1$; μ_i 为与第 i 个染色体相对应的 $[0, 1]$ 区间内的随机数。

步骤六: 变异操作采用多项式变异更新表征多层膜系沉积时间的种群 $G(g)$ 。设父代个体的第 i 个染色体 X_p 变异产生相应子代染色体 X_m , 即有:

$$X_m = \begin{cases} X_p, & P_m \leq \text{rand} \\ X_p + \sigma \cdot (u - l), & P_m > \text{rand} \end{cases}, \quad (7)$$

其中: P_m 为变异概率, rand 为 $[0, 1]$ 区间内的随机数, u 和 l 分别为染色体对应变量搜索范围的最大值和最小值, σ 值为:

$$\sigma = \begin{cases} (2 \cdot \text{rand})^{\frac{1}{\eta_m + 1}}, & \text{rand} < 0.5 \\ 1 - [2(1 - \text{rand})]^{\frac{1}{\eta_m + 1}}, & \text{rand} \geq 0.5 \end{cases}, \quad (8)$$

其中: rand 为 $[0, 1]$ 区间内的随机数, η_m 为变异算子, 本文相关算法中 $\eta_m = 1$ 。

步骤七: 使用精英保留策略对表征膜层沉积时间的种群 $G(g)$ 进行更新, 并转向步骤三。

基于以上设计方法, 以入射角带宽 $0^\circ \sim 18^\circ$, 目标反射率 48% 为设计目标, 设计出非周期宽角度 Mo/Si 多层膜膜系; 以入射角带宽 $0^\circ \sim 16^\circ$, 目标反射率 52% 为设计目标, 设计出堆栈宽角度 Mo/Si 多层膜膜系; 以反射光谱带宽 $13 \sim 15 \text{ nm}$, 目标反射率 26% 为设计目标, 设计出宽光谱 Mo/Si 多层膜膜系。需进一步指出的是, 在堆栈宽角度 Mo/Si 多层膜的离散化设计中, 增设每堆栈周期数及各堆栈膜层厚度为初始参数, 对它们进行实数编码, 通过离散化膜系膜系设计优化得到最优堆栈参数, 最终实现膜系的优化设计。

3 结果与讨论

3.1 宽角度 EUV 多层膜的结果与分析

3.1.1 非周期宽角度 EUV 多层膜

为便于对比分析, 同时基于传统和离散宽带多层膜膜系设计, 以相同的设计目标 (入射角带宽为 $0^\circ \sim 18^\circ$ 、目标反射率为 48%) 优化设计得到多层膜膜系。其中, 传统设计膜系结果不能直接应用于时间控制膜厚精度为 1 s 的镀膜系统进行实验镀制, 必须结合各靶位的沉积速率将传统设计膜系近似为实验最接近的可镀膜系, 如图 1(a) 所

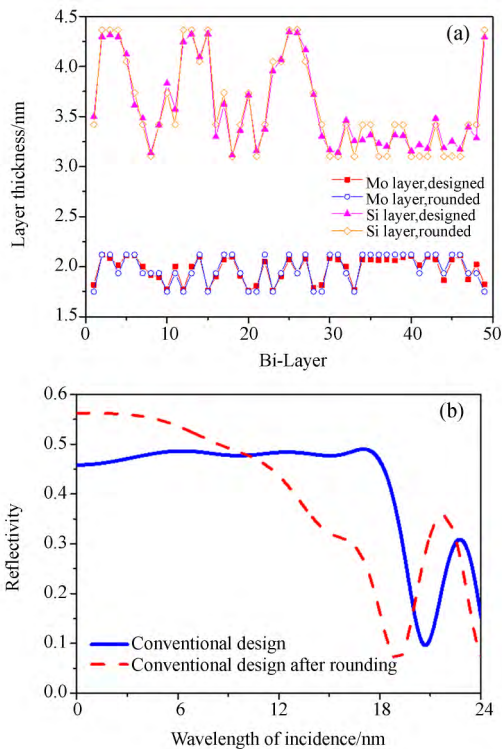


图 1 (a) 基于传统设计的 Mo/Si 宽角度多层膜理论膜厚及实验近似膜厚分布对比图, 图中未标出扩散层; (b) 基于传统设计理论膜系和实验近似膜系模拟反射光谱对比图

Fig. 1 (a) Comparison between the designed thickness and rounded thickness of each layer for broad angular multilayer based on conventional design scheme. The interlayers are not shown in the diagram. (b) Comparison of EUV reflectivity performance based on the designed thickness with that based on rounded thickness of each layer for broad angular multilayer by using conventional multilayer design scheme

示, 可以看到 Si 层膜厚的近似误差值最大达 0.15 nm, Mo 层膜厚的近似误差值最大达 0.07 nm。然而, 每层膜厚近似误差的累积将造成 EUV 多层膜反射光谱性能较为严重的恶化。将基于传统设计的理论膜系和实验最接近膜系反演出的反射光谱进行对比, 如图 1(b) 所示, 可看到传统膜系近似后的最接近膜系所反演出的反射光谱平台出现较为剧烈的恶化, 相应 EUV 反射率于入射角 $10.5^\circ \sim 18^\circ$ 内明显低于目标反射率 48%, 且入射角带宽明显变窄。

为验证应用宽带多层膜离散化膜系设计方法设计的非周期多层膜(入射角带宽理论设计值为 18° ,目标反射率为48%)在镀制中的优越性,将基于离散化宽带设计方法的非周期宽角度最优解膜系所反演出的反射光谱,与基于传统设计方法近似得到的实验最接近膜系反演出的反射光谱进行对比。如图2所示,与传统设计近似膜系相比,基于离散化设计的多层膜膜系的反射光谱平台更为平缓,目标反射率基本在48%且入射角带宽可达到 18° 。

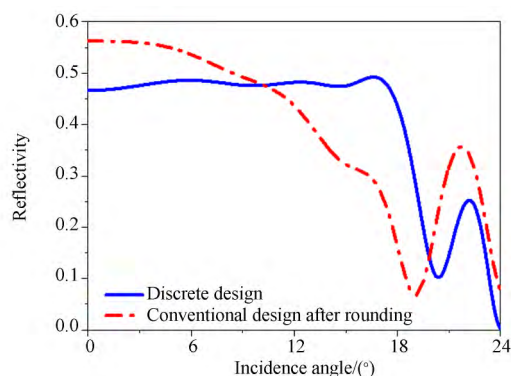


图2 基于离散化设计和传统设计近似膜系理论模拟反射光谱对比图

Fig. 2 Comparison of theoretical reflectivity of Mo/Si multilayer based on discrete broadband multilayer design with that based on conventional rounding design

基于以上离散化宽角度设计方法的优化膜系,在磁控溅射镀膜系统中制备宽角度 Mo/Si 多层膜,Mo 靶和 Si 靶的口径均为 60 mm,基底为超光滑 Si 基底;工艺气体为 Ar 气,纯度为99.99%,工艺流量为 2.6 mL/min;采用恒功率模式镀制,Mo 靶位功率为 30 W, Si 靶位功率为20 W。在镀膜过程中,计算机通过控制样品在不同靶位上的停留时间来控制膜厚,Mo 和 Si 膜层交替镀制,完成对宽角度 EUV 离散化多层膜的镀制。并对镀制多层膜的 EUV 反射谱和掠入射 X 射线反射 (Grazing Incidence X-ray, GIXR) 进行了检测。针对宽角度多层膜反射的测试结果,对实验镀制的多层膜的各层膜厚进行了拟合。图 3(a) 给出多层膜 EUV 宽角度反射测试结果及其拟合,从图中可看出,拟合反演的 EUV 反射曲线与实验结果基本吻合。测试结果表明,研制的非周期多层膜可实现入射角带宽 $0^\circ \sim 17^\circ$,高于 41% 的反

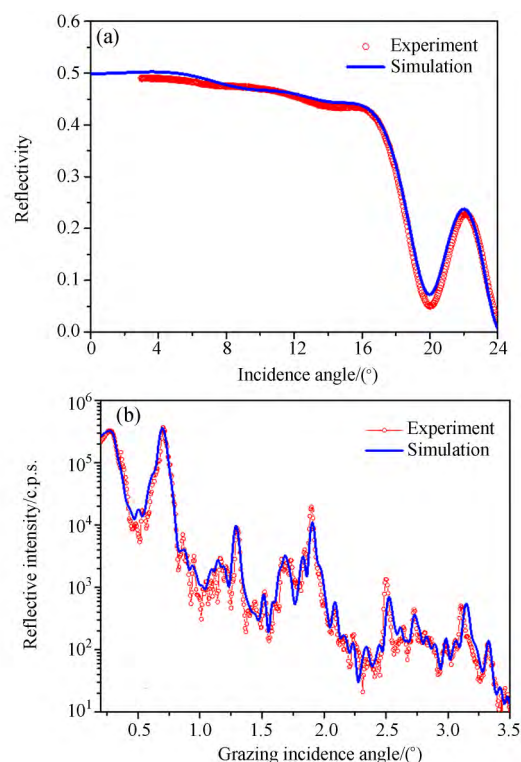


图3 (a) Mo/Si 宽角度多层膜 EUV 测量反射率曲线及其拟合曲线; (b) Mo/Si 宽角度多层膜 GIXR 测量结果及其拟合曲线

Fig. 3 (a) Measured EUV reflectivity of the fabricated broadband multilayer and its fitting curve at $\lambda = 13.5 \text{ nm}$; (b) Measured GIXR of the fabricated broad angular multilayer and its fitting curve

射率,体现了宽带多层膜离散化膜系设计方法的可行性。同时,在宽角度多层膜膜系设计过程中用到的结构参数(扩散层厚度、界面粗糙度等)由周期膜系表征得到^[21],这与实际制备得到的非周期宽角度多层膜的内部结构存在一定的偏差。此外,镀膜设备存在工艺气压、靶位功率的不稳定等问题,导致多层膜膜厚镀制存在随机误差,从而造成 EUV 测量反射率降低^[26]。多层膜的膜层结构由其 GIXR 的拟合求解进一步验证。测试中使用的是 Cu 的 $K\alpha$ 线($\lambda = 0.154 \text{ nm}$),精确测定了宽角度多层膜样品衍射强度随掠入射角度的变化,如图 3(b) 所示。为了进一步验证拟合宽角度多层膜膜层厚度的准确性,图 3(b) 给出了基于宽角度多层膜拟合膜系拟合反演出 GIXR 曲线与测量结果的对比。由图 3(a) 和 3(b) 可看出,拟合反演的 GIXR 曲线与实验测量结果基本重合,同时它

与 EUV 反射光谱拟合结果的自洽证明了拟合反演膜系的准确性。

为了分析上述宽角度多层膜实验镀制中的膜厚误差,将非周期宽角度 Mo/Si 多层膜拟合膜系与离散化设计膜系的膜厚进行对比,结果如图 4 所示。需要指出的是,离散化设计各膜层厚度并非仅以沉积速率的整数倍分布,须加上相应膜层成膜所需的厚度(即 d'_{Si} 和 d'_{Mo})。从图中可得,制备的多层膜膜厚分布于设计膜厚周围,这说明镀制过程中膜厚的控制是较为准确的。其中 Si 层膜厚误差在 ± 0.2 nm 内,而 Mo 层膜厚误差在 ± 0.1 nm 内,由此说明离散化宽带多层膜膜系设计方法、多层膜制备技术和工艺参量的选取满足非周期宽角度多层膜制备的高精度要求。

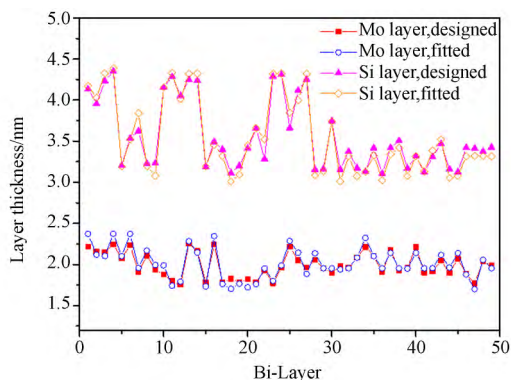


图 4 Mo/Si 宽角度多层膜理论设计膜厚分布及拟合膜厚分布,图中未标出扩散层

Fig. 4 Comparison between the designed thickness and fitted thickness of each layer for broad angular multilayer. The interlayers are not shown in the diagram

3.1.2 堆栈宽角度 EUV 多层膜

堆栈宽角度多层膜由多个周期多层膜组成^[20],如图 5 所示,其中每个堆栈的周期数 N_i 及每个堆栈周期内的多层膜周期厚度 d_i 由离散化膜系设计优化得到。与非周期宽角度多层膜相比,堆栈宽角度多层膜的设计具有优化参数较少和镀制过程简单易行的优势。在堆栈 Mo/Si 宽角度离散化膜系设计中,采用四堆栈结构,并考虑多层膜表面氧化层 SiO_2 的影响。将离散化膜系设计应用于堆栈宽角度多层膜的膜系设计中,优化得到的堆栈参数为:第一堆栈的周期数 $N_1 = 12$,周期厚度 $d_1 = 6.57$ nm;第二堆栈的周期数 $N_2 = 16$,周期厚度 $d_2 = 7.51$ nm;第三堆栈的周

期数 $N_3 = 17$,周期厚度 $d_3 = 7.01$ nm;第四堆栈的周期数 $N_4 = 4$,周期厚度 $d_4 = 7.20$ nm。

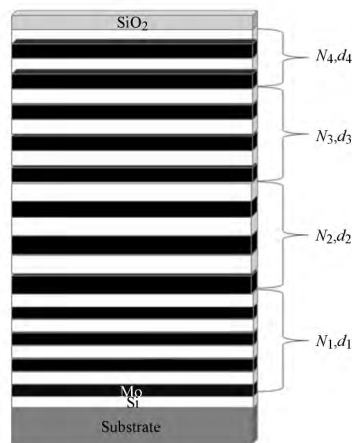


图 5 四堆栈宽角度多层膜离散化设计膜系示意图

Fig. 5 Schematic design of broad angular EUV multilayer containing four different stacks

同时基于传统和离散多层膜膜系设计,以相同设计目标(入射角带宽为 $0^\circ \sim 16^\circ$,目标反射率为 52%)得到堆栈宽角度多层膜膜系。为了验证完全由时间控制膜厚(精度为 1 s)且沉积速率可观的情况下,堆栈宽角度 Mo/Si 多层膜离散化膜系设计和镀制的可行性与优越性,将基于离散化堆栈宽角度设计反演的反射光谱与基于传统设计的近似膜系反演的反射光谱进行对比,结果如图 6 所示。分析图 6 可得,传统膜系设计结果在近似情况下的多层膜反射谱平台恶化严重,在 $0^\circ \sim 13^\circ$ 内 EUV 反射率下降明显;而与之相比,基于离散化设计的多层膜的反射光谱平台较为平缓且与目标设计值符合较好,体现出该方法在堆栈宽角度 EUV 多层膜离散化膜系设计中的优势。

基于堆栈多层膜离散化设计结果,采用磁控溅射镀膜系统,在时间控制膜厚的方法下(控制精度为 1 s),对相应的堆栈多层膜膜系进行了镀制,并对研制的多层膜进行了 EUV 反射测试。并且针对测试所得堆栈宽角度多层膜的反射光谱,对膜系结构进行拟合求解。图 7(a)给出了堆栈宽角度多层膜的 EUV 反射测试结果及其拟合结果,其中拟合反射率略高于实测反射率,其原因在于膜系的拟合反演过程中近似认为扩散层不变,而在实际的非周期 Mo/Si 多层膜中,扩散层的性质会随着 Mo 和 Si 膜层膜厚的变化而略有改变^[27]。从图 7(a)中的测试结果可看出,虽然膜厚

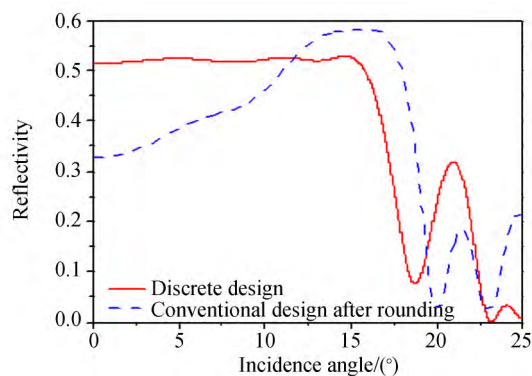


图 6 基于离散化设计和传统设计近似膜系的堆栈宽角度理论模拟反射光谱对比图

Fig. 6 Theoretical reflectivity of Mo/Si stack multi-layer based on discrete broad angular multi-layer design scheme in comparison to the theoretical reflectivity curve based on conventional design

受到镀膜设备工艺气压、靶功率不稳定等因素的影响存在随机误差,造成研制的堆栈宽角度多层膜在 $0^\circ \sim 10^\circ$ 反射角范围内的反射率会有一定损失,但是镀制的宽角度多层膜仍可实现入射角带宽为 $0^\circ \sim 18.5^\circ$, 高于 35% 的反射率。为了进一步分析镀制的堆栈多层膜的实际膜层结构,进行了 GIXR 测试,结果如图 7(b) 所示。图 7(b) 也给出了拟合堆栈膜系反演出的 GIXR 曲线与测量实验结果的对比。结果表明,拟合反演 GIXR 曲线与实验测试结果符合较好,它与 EUV 拟合反演结果的自治性进一步验证了拟合膜系膜厚的准确性。

综合前述结果,图 8 对比了堆栈宽角度多层膜拟合膜厚与理论设计膜系膜厚。从图 8 中可看出,堆栈多层膜膜厚随机分布于理论设计膜厚周围,膜厚误差均在 ± 0.2 nm 之内,这说明离散化

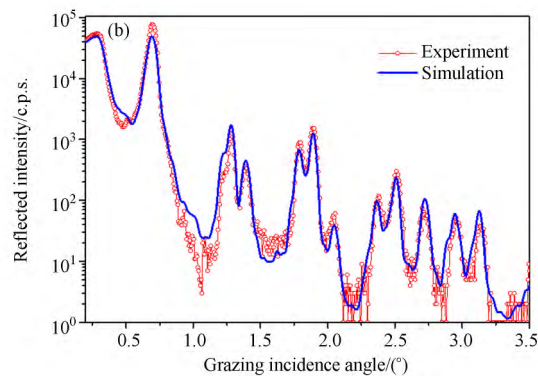
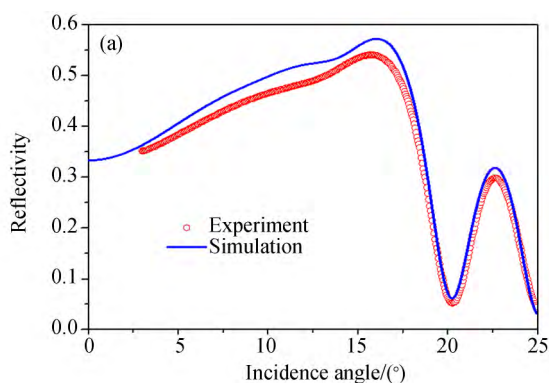


图 7 (a) Mo/Si 堆栈宽角度多层膜 EUV 测量反射率曲线及其拟合曲线; (b) Mo/Si 堆栈宽角度多层膜 GIXR 测量结果及其拟合曲线

Fig. 7 (a) Measured EUV reflectivity of the fabricated stack broad angular multilayer and its fitting curve at $\lambda = 13.5$ nm; (b) Measured GIXR of the fabricated stack broad angular multilayer and its fitting curve

设计方法设计出的多层膜膜系在实验镀制中可实现较高精度的膜厚镀制。需要说明的是,图 8 中仅显示 Mo 层膜厚及 Si 层膜厚,并未标出扩散层厚度。结合图 6~图 8 可知,在仅由时间控制膜厚的高沉积速率镀膜系统中,应用宽带 EUV 多层膜离散化膜系设计方法镀制堆栈宽角度 EUV 多层膜反射镜是可行的,能够制备出光谱性能良好的堆栈宽角度 Mo/Si 多层膜反射镜。

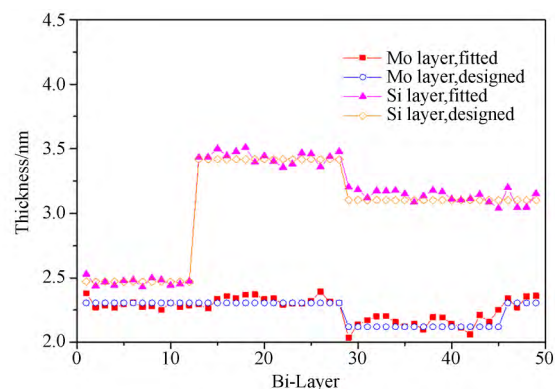


图 8 Mo/Si 堆栈宽角度多层膜膜厚理论设计分布及拟合膜厚分布,图中未标出扩散层

Fig. 8 Comparison between the designed thickness and fitted thickness of each layer for stack broad angular multilayer. The interlayers are not shown in the diagram

3.2 非周期宽光谱 EUV 多层膜

分别基于传统和离散宽带多层膜膜系设计方法,以相同设计目标(反射光谱带宽为 13~15 nm,目标反射率为 26%)优化得到宽光谱 Mo/Si 多层膜膜系。基于传统膜系所设计的 Mo/Si 宽光谱多层膜膜系近似前后的膜系对比如图 9(a)所示,该图表明膜厚镀制误差的最大值达 0.11 nm。为直观探究传统设计膜系每层膜厚近似所带来的光谱性能恶化情况,本文将基于传统设计的理论宽光谱膜系和实验可镀的最接近膜系模拟

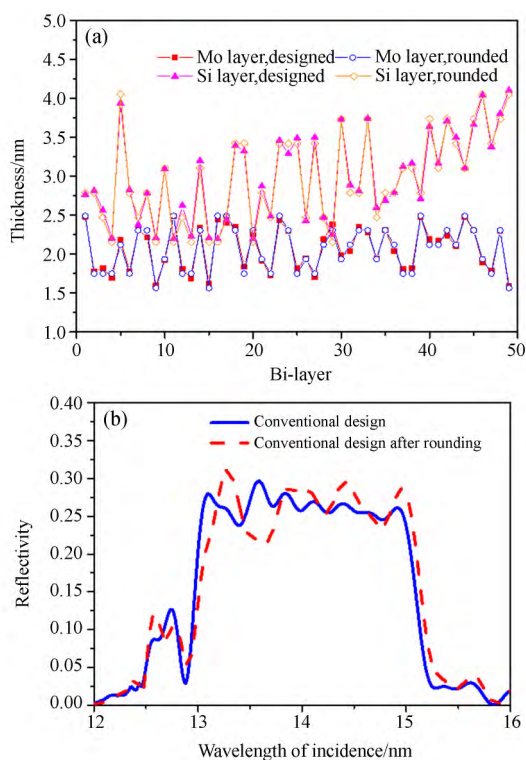


图 9 (a)基于传统设计的 Mo/Si 宽光谱多层膜理论膜厚及实验近似膜厚分布对比图,图中未标出扩散层;(b)基于传统设计理论膜系和实验近似膜系模拟反射光谱对比图

Fig. 9 (a) Comparison between the designed thickness and rounded thickness of each layer for broad spectral multilayer based on conventional design scheme. The interlayers are not shown in the diagram; (b) Comparison of EUV reflectivity performance based on the designed thickness with that based on rounded thickness of each layer for broad spectral multilayer by using conventional multilayer design scheme

的反射光谱进行对比。如图 9(b)所示,与膜系近似前宽光谱多层膜光谱性能相比,基于传统设计近似膜系所模拟的反射光谱平台明显向长波方向发生偏移且反射率与设计目标有较大偏差。

为验证在完全由时间控制膜厚且沉积速率一定的情况下,离散化宽光谱 EUV 多层膜(反射光谱带宽理论设计值为 13~15 nm,目标反射率为 26%)膜系设计的优势,将基于传统设计的实验近似膜系反演出的反射光谱与基于离散化设计反演出的反射光谱进行对比,结果如图 10 所示。分析图 10 可得,与传统设计近似膜系相比,基于离散化设计方法的宽光谱膜系反射谱平台明显更为平坦,能够达到目标设定值,体现出了离散化多层膜膜系设计方法镀制宽光谱多层膜的优越性。

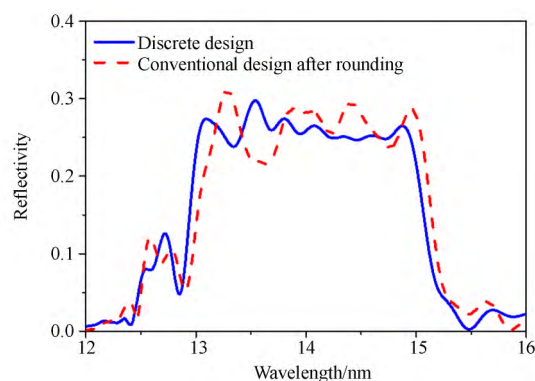


图 10 基于离散化设计和传统设计近似膜系理论模拟反射光谱对比图

Fig. 10 Theoretical reflectivity of Mo/Si multilayer based on discrete broad spectral multilayer design in comparison to the theoretical reflectivity curve based on conventional scheme

基于非周期宽光谱多层膜离散化设计结果,采用磁控溅射镀膜系统,在仅由时间控制膜厚的方法下(控制精度为 1 s),进行 Mo/Si 多层膜实验镀制,并对制备的宽光谱 Mo/Si 多层膜的 EUV 反射谱进行测试。针对其反射光谱检测结果,对镀制的宽光谱多层膜各膜层厚度进行拟合,图 11(a)给出了基于拟合膜系反演的 EUV 反射光谱与其实验结果的对比。对比分析表明,拟合得到的 EUV 反射谱与实验测试结果基本一致,但是拟合的反射率略高于实测反射率,其原因在于膜系拟合反演过程中对扩散层做近似处理,固

定扩散层的结构参数,而在实际的非周期多层膜中,扩散层的性质会随着 Mo 和 Si 膜层膜厚的变化而略有变化。图 11(a) 中,基于离散化宽光谱膜系所镀制的多层膜反射镜可实现反射光谱带宽为 12.9 ~ 14.9 nm 且高于 21% 的反射率,体现了宽带 EUV 多层膜离散化膜系设计方法在宽光谱多层膜反射镜镀制中的可行性。不过,镀膜设备工艺气压、靶位功率的不稳定等实验因素导致膜厚存在随机误差,从而造成 EUV 测量反射率的一定损失及反射光谱较小的偏移。为进一步分析宽光谱多层膜镀制膜系与设计膜系的偏差,对镀制的宽光谱多层膜进行了 GIXR 测试和拟合,结果如图 11(b) 所示。对比结果表明,多层膜的

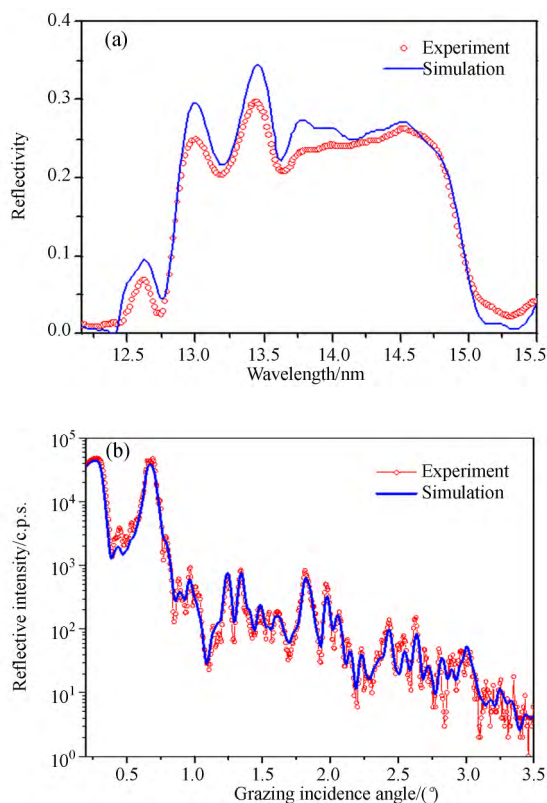


图 11 (a) Mo/Si 宽光谱多层膜反射镜 EUV 测量反射率曲线及其拟合曲线; (b) Mo/Si 宽光谱多层膜 GIXR 测量结果及其拟合曲线

Fig. 11 (a) Measured EUV reflectivity of the fabricated broadband wavelength multilayer and its fitting curve at $\lambda = 13.5 \text{ nm}$; (b) Measured GIXR of the fabricated broadband wavelength multilayer and its fitting curve

GIXR 拟合反演曲线和实验测量结果也符合较好,它与 EUV 反射光谱拟合膜系的良好自洽表明该多层膜拟合膜系结果较为准确,可表示实验镀制的宽光谱多层膜的真实膜系结构。

制备的宽光谱多层膜拟合膜厚与理论设计膜厚的对比如图 12 所示。从图 12 中可以看出,制备的膜厚较为均匀地分布于理论设计膜厚附近,其中 Si 层膜厚误差小于 $\pm 0.2 \text{ nm}$, Mo 层膜厚误差小于 $\pm 0.1 \text{ nm}$,这说明以离散化膜系方法设计出的 EUV 宽光谱多层膜膜系可以在仅由时间控制膜厚的镀膜系统中得到高精度镀制。结合图 9 ~ 图 12,可以看出宽带多层膜离散化膜系设计方法在宽光谱多层膜设计和制备中的可行性与优势。

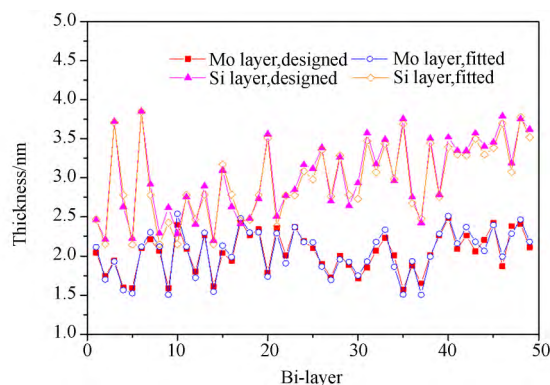


图 12 Mo/Si 宽光谱多层膜理论设计膜厚分布及拟合膜厚分布,图中未标出扩散层

Fig. 12 Comparison between the designed thickness and fitted thickness of each layer for broadband wavelength multilayer. The interlayers are not shown in the diagram

综上所述,仅由时间控制膜厚的磁控溅射镀膜系统(控制精度为 1 s)的实际可镀膜厚呈现以沉积速率为公差的离散化数值分布,以研制的 Mo/Si 多层膜为例,仅由时间控制的磁控溅射系统可镀膜厚只能是以 Mo 靶位和 Si 靶位的沉积速率为公差的一系列离散数值;而传统宽带多层膜设计中膜厚设计为任意数值,这意味着传统宽带多层膜膜系设计结果在上述镀膜系统中的制备精度不高,只能结合沉积速率对最接近传统设计膜系的实验可镀膜系进行近似化镀制。但是多层膜每层膜厚误差的累积会恶化实际多层膜的反射

光谱性能,出现带宽变窄、反射率下降的现象。相较于传统设计方法,离散化膜系设计方法结合镀膜系统各靶位的沉积速率及控制精度,直接以膜系沉积时间为设计参数,能在膜厚控制精度较低的镀膜系统中制备出最优的多层膜膜系。

4 结 论

本文提出了基于 EA 的宽带 EUV 多层膜离散化膜系设计和制备方法。首先阐述的宽带 EUV 多层膜离散化膜系设计方法,使用仅由时间控制膜厚的磁控溅射系统(控制精度为 1 s)对上

述离散化宽带多层膜膜系进行镀制,测试结果表明:镀制的宽角度多层膜实现了反射率高于 41%、入射角 $0^{\circ}\sim 17^{\circ}$ 的宽角度反射带;镀制的堆栈宽角度多层膜实现了反射率高于 35%、入射角 $0^{\circ}\sim 18.5^{\circ}$ 的宽角度反射带;镀制的宽光谱多层膜实现了反射率高于 21%、12.9~14.9 nm 的宽光谱反射带。此外,对 EUV 反射光谱和 GIXR 反射谱进行拟合,分析了各膜系的膜厚误差。分析结果表明,离散化膜系设计方法在宽光谱和宽角度 EUV 多层膜镀制具有一定的优势。相关研究验证了在膜厚控制精度较低的镀膜系统中离散化膜系设计方法的可行性与优势。

参考文献:

- [1] SERTSU M G, GIGLIA A, BROSE S, *et al.*. Deposition and characterization of B_4C/CeO_2 multilayers at 6. x nm extreme ultraviolet wavelengths [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 119(9):095301.
- [2] ALNAIMI R, WANG H, ZHANG Z, *et al.*. Design calculations and characterization of C/Cr multilayer mirrors in the 6 nm BEUV [J]. *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, 2016, 127(2):588-592.
- [3] WANG Z, CHENG X, ZHU J, *et al.*. Investigation of aperiodic W/C multi-layer mirror for X-ray optics [J]. *Thin Solid Films*, 2011, 519(20): 6712-6715.
- [4] 张超, 张杰瑞, 王一名, 等. 基于量子进化算法的宽角度极紫外多层膜设计[J]. *光学学报*, 2017, 37(6):347-355.
ZHANG C, ZHANG J R, WANG Y M, *et al.*. Design of broad-angle extreme ultraviolet multilayer coatings based on quantum evolutionary algorithm [J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(6):347-355. (in Chinese)
- [5] YAKSHIN A E, KOZHEVNIKOV I V, ZOETHOUT E, *et al.*. Properties of broadband depth-graded multilayer mirrors for EUV optical systems [J]. *Optics Express*, 2010, 18(7): 6957-6971.
- [6] KOZHEVNIKOV I V, YAKSHIN A E, BIJKERK F. Wideband multilayer mirrors with minimal layer thicknesses variation [J]. *Optics Express*, 2015, 23(7):9276-9283.
- [7] 匡尚奇, 张超, 王一名, 等. 改进型量子进化算法在宽带 EUV 多层膜设计中的应用[J]. *光学 精密工程*, 2017, 25(8):2046-2056.
KUANG SH Q, ZHANG CH, WANG Y M, *et al.*. Application of improved quantum evolutionary algorithm in design of broadband EUV multilayer [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2017, 25(8):2046-2056. (in Chinese)
- [8] TIKHONRAVOV A V, TRUBETSKOV M K, SHARAPOVA S, *et al.*. Design of aperiodic multilayers for EUV applications [C]. *Optical Interference Coatings*, 2013.
- [9] WANG Z, MICHETTE A G. Broadband multilayer mirrors for optimum use of soft x-ray source output [J]. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 2000, 2(5):452-457.
- [10] WANG Z, KUN C, MA Y, *et al.*. Design, fabrication, and characterization of broadband multilayer mirrors for EUV optics at normal incidence [J].

- SPIE*, 2000, 4146:83-90.
- [11] KUHLMANN T, YULIN S A, FEIGL T, *et al.*. Design and fabrication of broadband EUV multilayer mirrors [J]. *SPIE*, 2002, 4688:509-515.
- [12] KUANG S Q, GONG X P, YANG H G. Robust design of broadband EUV multilayer using multi-objective evolutionary algorithm [J]. *Optics Communications*, 2018, 410:805-810.
- [13] CHENG X, WANG Z, ZHANG Z, *et al.*. Design of X-ray super-mirrors using simulated annealing algorithm [J]. *Optics Communications*, 2006, 265 (1):197-206.
- [14] PANWAR R, AGARWALA V, SINGH D. Design and experimental verification of a thin broadband nanocomposite multilayer microwave absorber using genetic algorithm based approach [C]. *American Institute of Physics*, 2014:406-415.
- [15] AQUILA A L, SALMASSI F, DOLLAR F, *et al.*. Developments in realistic design for aperiodic Mo/Si multilayer mirrors [J]. *Optics Express*, 2006, 14(21):10073-10078.
- [16] 王占山, 马月英. 极紫外多层膜制备工艺研究 [J]. *光学技术*, 2001, 27(6):532-534.
WANG ZH SH, MA Y Y. Researches on extreme ultraviolet multilayers fabrication [J]. *Optical Technique*, 2001, (6):532-534. (in Chinese)
- [17] 刘震, 李旭, 马月英, 等. 23.4 nm 软 X 射线多层膜反射镜研制 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2011, 31 (4):1138-1141.
LIU ZH, LI X, MA Y Y, *et al.*. Development of soft x-ray multilayer mirror at 23.4 nm [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2011, 31 (4): 1138-1141. (in Chinese)
- [18] 张立超. 极紫外多层膜技术研究进展 [J]. *中国光学*, 2010, 3(6):554-565.
ZHANG L CH. Progress in EUV multilayer coating technologies [J]. *Chinese Journal of Optics and Applied Optics*, 2010, 3 (6): 554-565. (in Chinese)
- [19] 朱京涛, 宋竹青, 丁涛, 等. 极紫外 Mg/SiC、Mg/Co 多层膜的稳定性 [J]. *光学精密工程*, 2013, 21 (6):1380-1386.
ZHU J T, SONG ZH Q, DING T, *et al.*. Stability of Mg/SiC Mg/Co EUV multilayers [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2013, 21 (6): 1380-1386. (in Chinese)
- [20] 陈锐, 王风丽, 朱京涛, 等. 基于遗传算法的 30.4 nm 多层膜设计 [J]. *光子学报*, 2008, 37 (9): 1819-1824.
CHEN R, WANG F L, ZHU J T, *et al.*. Design of 30.4 nm multilayer based on genetic algorithms [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2008, 37 (9):1819-1824. (in Chinese)
- [21] KUANG S Q, GONG X P, YANG H G. Characterization of periodic extreme ultraviolet multilayer based on multi-objective evolutionary algorithm [J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, 122 (18):185302.
- [22] 梅雪峰, 匡尚奇, 谢耀. 量子进化算法在极紫外多层膜表征和设计中的应用 [J]. *长春理工大学学报 (自然科学版)*, 2016, 39(4):1-7.
MEI X F, KUANG SH Q, XIE Y. Application of the quantum evolutionary algorithm in researches of EUV multilayer [J]. *Journal of Changchun University of Science and Technology*, 2016, 39 (4):1-7. (in Chinese)
- [23] 周祥燕, 张超, 匡尚奇, 等. 基于量子衍生遗传算法的光学薄膜结构分析 [J]. *中国激光*, 2017, 44(12): 1203002.
ZHOU X Y, ZHANG CH, KUANG SH Q, *et al.*. Analysis of the structure of optical thin film based on quantum-inspired genetic algorithm [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(12):1203002. (in Chinese)
- [24] BABANOV Y A, SALAMATOV Y A, PONOMAREV D A, *et al.*. Structural characterization of Cr/Gd/Cr and Cr/Gd/Fe/Cr multilayer nanostructures by X-ray reflectometry [J]. *Physics of Metals and Metallography*, 2015, 116 (11): 1116-1126.

- [25] DEB K, AGRAWAL R B. Simulated binary cross-over for continuous search space [J]. *Complex Systems*, 1994, 9(3):115-148.
- [26] GAIKOVICH P K, POLKOVNIKOV V N, SALASH-CHENKO N N, *et al.*. Effect of roughness, deterministic and random errors in film thickness on the reflecting properties of aperiodic mirrors for the EUV range [J]. *Quantum Electronics*, 2016, 46 (5):406-413.
- [27] NAUJOK P, YULIN S, MÜLLER R, *et al.*. Interface characterization in B-based multilayer mirrors for next generation lithography[J]. *Thin Solid Films*, 2016, 612:414-418.

作者简介:



匡尚奇(1981—),男,吉林长春人,博士,副教授,2009年于吉林大学获得博士学位,主要从事量子光学和量子算法方面的研究。E-mail: physicskuang@sina.com



李 硕(1998—),男,河南许昌人,现为长春理工大学理学院本科生,主要从事极紫外多层膜方面的研究。E-mail: lesliesmiling@163.com