

EUVL 用マスク基板の欠陥検査装置の開発研究

富江 敏尚*

旧 電子技術総合研究所

概要

日米欧で 20 年に亘って開発が行われたリソグラフィーEUVL が半導体の量産技術として稼働を始めた。難航した理由は EUV 光源とマスク基板の欠陥検査の困難さであった。産総研方式の製品化が後者の問題を解決した。産総研方式の欠陥検査法が 2001 年から開始された半導体 MIRAI プロジェクトで取り上げられた経緯と原理実証されてからレーザーテック社の製品化に至るまでの経緯を紹介し、従来方式の 3 桁以上の検査速度を可能にした方式の考案に繋がった産総研時代の研究と EUVL に関わって来た経緯を紹介する。

目次

1. 初めに	p.2~p.7
1-1. 半導体の量産に 2019 年から EUV 露光の導入	
1-2. デバイスの高集積化とリソグラフィー技術の進展	
1-3. EUV 露光装置を独占する ASML とマスク基板欠陥検査装置を独占するレーザーテック	
2. 多層膜マスク基板の欠陥検査法の考案	p.7~p.12
2-1. 多層膜鏡の欠陥検査の特異性	
2-2. 新方式誕生前夜	
2-3. MIRAI のために考案	
2-4. 発散光源の露光波長で照明したマスク表面をシュバルツシルト光学系で結像	
2-4-1. ショットノイズ	
2-4-2. 大きな遮蔽 NA の暗視野結像	
2-4-3. CCD の読み出し速度を小さくするための大きな画素	
2-4-4. 大パワー照明のための大きな照明領域	
2-4-5. Berkeley の手法の問題点	
2-4-6. 必要な光量	
2-4-7. まとめ。産総研方式の構成要素	
3. 半導体 MIRAI での研究。原理実証から製品化まで	p.12~p.15
3-1. 開発に着手する迄の勉強会	
3-2. 初年度は研究費ゼロ	
3-3. HOYA が検査用基板を作成	
3-4. 欠陥検査装置の製品化、事業化に向けて	
4. EUVL の最初の提案は産総研彙報の鳳紘一郎、谷野博史論文	p.15~p.16
5. 位相欠陥検査法を生み出した研究	p.17~p.32
5-1. LPP を光源にする EUPS	

*現在 中華人民共和国長春理工大学特聘教授、 toshihisa.tomie@gmail.com

5-1-1. 顕微光電子分光法による材料・デバイスの高度分析評価技術	
5-1-2. 高速欠陥検査や EUVL に必要なエタンデュの大きい光源	
5-2. X線顕微鏡とショットノイズ	
5-2-1. ショットノイズで決まる空間分解能	
5-2-2. 空間分解能の4乗に反比例して増える露光量で生物試料が瞬間蒸発	
5-3. レーザー核融合とX線レーザーとCCDカメラ	
5-3-1. X線フィルムのCCDカメラへの置き換え	
5-3-2. CCDカメラと菊池誠	
5-3-3. EUVに感度を持つ背面照射型CCDカメラの登場	
5-4. EUVLは究極のリソグラフィ技術	
5-4-1. LPPによるX線等倍露光	
5-4-2. 13.5 nm が最適波長	
5-4-3. ショットノイズがレジスト感度を決める	
5-4-4. 色収差がない反射光学系で広帯域スペクトルの利用	
5-4-5. 13.5 nm 光源の最適元素は錫	
5-4-6. EUV 光源パワーは限界に近い	
5-4-7. 微粒子クラスターで高くり返しLPP	
6. 世界情勢と為せば成る者との出会いと稀有な幸運に導く最大限の努力	p.32~p.34
7. まとめ	p.34~p.35

1. 初めに

1-1. 半導体の量産に2019年からEUV露光の導入

日本の半導体の復活を目指して、量産に向けた製造拠点となるラピダス社が2022年8月に設立された。2024年末にEUVL (Extreme ultraviolet lithography、極端紫外光リソグラフィ) 露光装置を導入し、2020年代後半に2 nm以降世代の半導体の量産を目指すという(文献1)。世界最大の、半導体製造に特化した会社(ファウンドリ)である台湾のTSMC社は3 nmプロセス(N3)による半導体の量産開始の式典を2022年12月末に催した(文献2)。TSMCでは2019年10月からN7+と呼ぶプロセスからEUVLを導入しており(文献3)、2020年のN5に続く3世代目のEUVLである。ファウンドリ事業では世界第二位の韓国Samsung社は2018年10月に7 nmプロセス(7LPP)にEUVLを導入し、2021年から5 nmプロセスのデバイスの量産を開始した(文献4)。CPUなどのLogic半導体を中心の半導体世界最大手の米国Intel社は2023年第2四半期にEUVLを導入したIntel4プロセスで作ったCPUを出荷する計画である(文献5)。

このように、1990年代後半に日米欧の3極での巨大国家プロジェクトとして技術開発が始まったEUVLが、20年を経て遂に、半導体の量産技術として導入された。実用化を阻んで来た最大の技術課題はEUV光源だったが、一時期、今一つの致命的課題とされたのがマスク基板の欠陥検査であった。この課題を筆者が考案(文献6)した方式(産総研方式と仮称する)が解決した。本格稼働を始めたEUVLに欠かせない検査装置として活躍している。

(本稿で用いる技術用語①)

マスク：半導体デバイスの微細回路を描いた原版。電子ビームで描画し、非常に高価である。光マスクの場合、硝子や石英の透明基板の上に不透明な金属薄膜で回路パターンを描く。一つの半導体デバイスを作るのに多枚数の原版が必要。凸版印刷と大日本印刷でマスク市場のシェアは5割近い。パターンを描画する基板に欠陥があれば、レジストに転写されてデバイス回路の断線や短絡になる。マスク基板上の欠陥の発見と修正が必須である。

リソグラフィー：マスクに描かれた超微細な回路パターンをウェハーに4:1程度に縮小印刷して、半導体デバイスを大量生産する技術。生産コストを下げるために、高速転写、大きなスループット（時間当たりウェハー処理枚数）が求められる。

EUVL：マスクのパターンをレジストに印刷するエネルギー（インクの役割）として極端紫外光（厳密な定義はないが概ね波長100~5nm）を用いるリソグラフィー。実用化されているのは13.5nmだけ。

ウェハー：超高純度の単結晶Siを1mm程度に切断した円盤。n, p型イオンの注入でトランジスタを作る。ウェハーあたりのチップ数を増やして低コスト化するための大口径化が進み2000年代初めに12インチ(300mm)に移行した。2017年時点で12インチへの移行コストが未回収だった様である。2012年頃に16インチ(400mm)化の動きがあったが現在は下火である。自動車用半導体では8インチが主流。2004年の日本企業のシェアは70%弱で、2021年の信越化学とSUMCOの2社合計のシェアは53%である。

レジスト：電子ビームや光の照射で溶解度が変化する化学耐性（chemical resistance）のある高分子。マスクパターンを転写露光後に現像すると光照射部分あるいは非照射部分が洗い流される。現像されたレジストが、次の、イオン等でレジストの下に形成した酸化膜を削り取って（エッチングして）Siウェハー上にデバイス回路のパターンを描くためのマスクになる。信越化学、JSR、東京応化等の日本企業のシェアはArFで90%弱と言われる。

1-2. デバイスの高集積化とリソグラフィー技術の進展

世界の半導体市場は、1986年に350億ドルだったが1995年に1,000億ドルを越えた。その後の成長の勾配は緩やかだが、2020年までに3倍になっている（文献7）。全てと言って良い産業の基盤と言える重要産業である。半導体産業の進歩を支えたのはデバイスの高集積化である。

図1に示すように、1mm²当たりのトランジスタ数（赤印、右軸）は、1970年には100程度であったが、ムーアの法則と呼ばれる級数的増大を続け、2020年には1億個になっている（文献8）。50年間で100万倍、2.5年に2倍の速さで増えてきた。

デバイスの超高集積化により、スマートフォン（スマホ）に150億程度のトランジスタが搭載されている（文献9）。スーパーコンピュータ（スパコン）の性能で世界一になった富岳のトランジスタ数は87億個とされており（文献10）、トランジスタの数だけで言えば、掌の上のスマホはスパコン以上と言うことになる。人々は恐ろしいほ

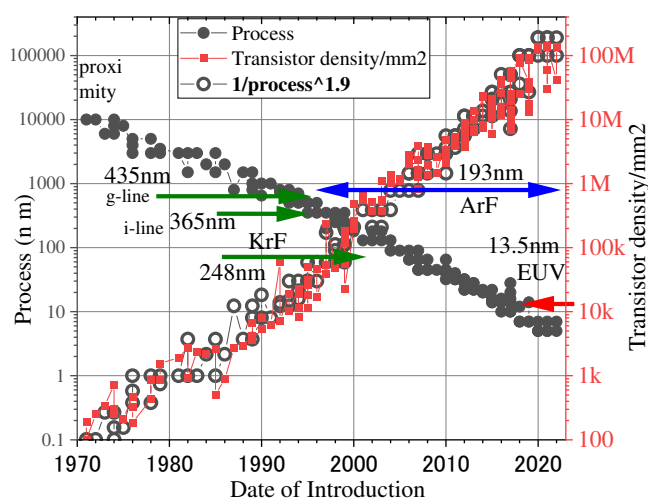


図1：半導体デバイスは50年間で100万倍に高密度化し、プロセス技術は10μmから7nmに微細化した。

どの便利さを得た。また、夏の工事現場などで、労働者の胸に温度センサ半導体チップを貼り付けてデータを端末に無線で送り、熱中症を予防しようという製品開発も行われており（文献 11）、超高集積化の社会生活への恩恵は測り知れない。DRAM のギガビット当たり価格は、1970 年に 20 億ドルだったが 2010 年に 10 ドルで 8 桁も安くなった（文献 12）。2000 年以降、DRAM の単価はほぼ下げ止まったが、Flash memory のビット単価は一桁低下した。我々は代償なしで便利さを得た。

High-k、low-k 等の材料開発や finFET 等のトランジスタ構造の開発など、多くの技術開発により半導体デバイスの高集積化が実現されてきたが、最大の牽引力はリソグラフィー技術の進歩である。

文献 8 に依れば、半導体デバイスの回路の最も細い線幅を形成するためのプロセス・ルール（図 1 の中実黒丸、左軸）は、1970 年代に 10 μm だったが 2020 年には 7 nm に迄小さくなっている。接触露光が 1972 年から間隔をあけての近接露光になり、1973 年からマスクパターンのレジスト上への等倍転写露光になった。図 1 中の矢印で示すように、1978 年から水銀ランプの狭帯域発光線での縮小転写が始まり 1986 年からは光源がレーザーになった。先ず KrF レーザーが、1996 年から ArF レーザーが導入された（文献 13）。

解像限界 R は、露光光の波長 λ 、転写光学系の開口数 NA を使って、次式で表される。

$$R = k_1 \lambda / NA \quad \text{—— (1)}$$

露光波長を g 線 (435 nm)、i 線 (365 nm)、KrF (248 nm)、ArF (193 nm) と短波長化することで微細化が進んだ。

ITRS (International Technology Roadmap for Semiconductors) とその後継の IRDS (International Roadmap for Devices and Systems) が数値で発表した技術ノードと回路のパターンの周期の半分である Half Pitch (HP: リソグラフィーに要求される解像度) の 2000 年以降の推移（文献 14）を図 2 に示した。

2005 年から ArF で液浸にして $NA = 1.35$ に大きくした露光が始まった。レジストの現像条件を調整してプロセス係数 $k_1 = 0.26$ にして $R = 37 \text{ nm}$ 迄可能になった。しかし、要求される HP は、2011 年に解像限界を越えた。解像限界を越える微細化を、一層のパターンを複数のパターンに分割して露光するマルチパターンニングで実現した。ライン&スペースのような繰り返しパターンは側壁プロセスで微細化した。

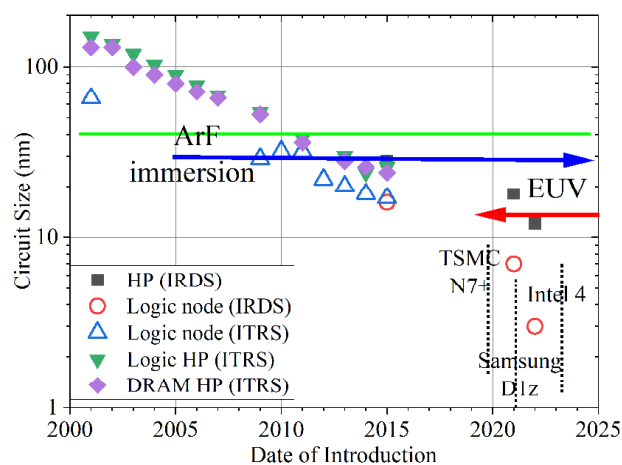


図 2: ハーフピッチと技術ノードの推移。2005 年に ArF が液浸になり、2019 年頃から量産に EUVL が導入された。

しかし、スループットが低下する、露光の位置合わせが難しい、パターンの形状が歪む等の問題が露光回数とともに深刻化するため、1-1に述べた様に、各社は波長 13.5 nm を使った EUV 露光の導入を始めた。2010 年頃からの導入が期待された EUVL が、10 年遅れてではあるが、遂にデバイス製造に導入された。

(本稿で用いる技術用語②)

MOSFET：金属・酸化物・半導体接合の電界効果トランジスタ (Metal-Oxide-Semiconductor Field Effect Transistor)。ゲート材料の耐熱性軽減のためのダミーゲートをマスクにしたイオン注入でソースとドレインを作り、ダミーを除去してゲートの酸化膜と電極を付ける。ソース・ドレイン方向のゲートの大きさを「ゲート長」、直行方向の大きさをゲート幅と呼ぶ。ダミーゲートの下にも注入イオンが拡散し、ソースとドレインの間隔である「チャンネル長」はゲート長より少し短い。ゲートはコンデンサとして働き、n チャンネル MOSFET では、ゲート電極が正電位になると、ゲート酸化膜と接触した p 型基板に自由電子が誘起されて n 型になって n 型ソースとドレインの間に電子の通路(n-チャンネル)ができる。

High-k, low-k：誘電率 ϵ を $\epsilon = \kappa \epsilon_0$ (ϵ_0 は真空の誘電率) と表すときの比誘電率 κ (カッパ) を k (ケイ) と呼ぶこともある。high-k は高誘電率材料、low-k は低誘電率材料である。比誘電率は SiO_2 で 3.9、 HfO_2 で 25 程度である。金属板で挟まれた厚さ t で面積 S の絶縁膜の両面に、金属板間に電圧 V をかけると電荷 $Q = CV$ が誘起される。電気容量 C は $C = \epsilon S / t$ であるので、high-k 材料のコンデンサは多くの電荷を誘起する。MOSFET を微細化すると、ゲートの面積が小さくなってチャンネルに誘起される電荷が減って駆動電流が減る。ゲート酸化膜厚 t を小さくして電気容量を増やし誘起電荷を増やしてきたが、トンネル電流が激増する 1~2 nm 以下に薄膜化できないため、high-k 材料の開発で電流駆動力を維持してきた。

finFET：従来の平板型 (planar) MOSFET の電流が流れるソース・ドレインを基板に垂直に立てた立体トランジスタ。立体構造にすることで、ゲート絶縁膜を三方向から取り囲んでゲート電極が設けられ、ゲートの面積が大きくなり、誘起電荷が増え、電流駆動力が大きくなる。三方向からのゲートであるので 3 ゲートとも呼ばれるが、立ったゲート電極の両側のソースとドレインの形状が魚のひれ (fish fin) に似ていることから命名された finFET と呼ばれることが多い。駆動電流を増やすために、個別の制御はできないが、一つのゲートに複数のフィン (ソース・ドレイン) を並べた構造になっている。

液浸：Abbe は顕微鏡で識別できる 2 点の距離 (= 分解能) が d 以下にならないことを見出した。

$$d = \lambda / (n \sin \theta) \text{ ——— (2)}$$

n は屈折率である。(2) 式を Abbe の回折限界と呼ぶ。広がり半角を $\theta/2$ ($= \theta/2$) と置くと開口数は $NA = n \sin \theta/2$ であり、レジストの非線形性 k_1 を入れて変形したのが (1) 式である。 $\sin \theta \leq 1$ なので、真空中 ($n=1$) では $NA \leq 1$ である。レンズとレジストの間に液体 ($n>1$) を満たして、 NA を大きくして d (解像度 R) を小さくするのが液浸である。

側壁プロセス：露光で形成したパターンの側壁に薄膜を堆積し、次に、最初に作ったパターンを除去して、元のパターンの半分の HP の繰り返しパターンを形成する。繰り返せば 1/4 の HP が得られる。

技術ノード：半導体の技術世代を表す指標。平板 MOSFET の時はゲート長だったが、立体構造の finFET 以降は最小の加工寸法と一致しない。各社でも異なり、Intel の 10 nm 世代と TSMC と Samsung の 7 nm 世代が同等の性能と言う報告もある。ノード名に “nm” を使わない動きがある。

g 線、i 線：蒸気圧が 1~10 気圧の放電水銀 (Hg) ランプは 253.7 nm、296.7 nm、312.6 nm、365.0 nm (i 線)、404.7 nm、435.8 nm (g 線)、546.1 nm (e 線)、577.0 nm、579.1 nm、690 nm、1014 nm の輝線を発光する。発光効率は 50 lm/W で、白熱電球の 15~20 lm/W の 3 倍程度明るい。尚、C 線は H の 656.3 nm、D 線は Na の 589.3 nm で、F 線は H の 486.1 nm。

1-3. EUV 露光装置を独占する ASML とマスク基板の欠陥検査装置を独占するレーザテック

EUVL は、1990 年に 50 nm のパターン転写が報告されて有望なリソグラフィーと注目され、1990 年代後半から米国で本格的な開発研究が始まり、それを受けて日欧でも大規模国家プロジェクトが始まった (文献 15)。EUVL は、初めての、真空中での露光であること、反射光学系で像転写を行うこと、レーザー生成プラズマ (LPP: laser-produced plasma) を

光源とすること等、従来のリソグラフィー技術とは大きく異なるリソグラフィー技術である。様々な新技術の開発が必要であり、初めて経験する現象の理解と解決法の模索には、筆者の様な基礎研究を行う研究者の動員も必要であった。資金的にも、一民間企業の或いは数企業の連携では負担不可能であり、国家プロジェクトでの推進以外には実用化は不可能であった。一国のみでは技術開発が難しく、NEDO（国立研究開発法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構）による EIDEC（株式会社 EUVL 基盤開発センター）プロジェクト（次世代半導体微細加工・評価基盤技術の開発）での位相欠陥検査装置技術開発の様に、様々な国の企業の協力が不可欠であった。1990 年代半ばから 20 年弱の間深く関わった筆者は、国際会議の場で EUVL 開発は今年で終わるだろうという声を聞き続けた。4 半世紀を経て、遂に EUVL を適用した半導体デバイスが製造されていることは感慨深い。

LPP は、固体・液体・気体の標的にパルスレーザーを照射して生成される数十万度の高温プラズマで、高輝度 EUV 光源になる。固体平板をターゲットにする従来法（図 5）では、プラズマ生成に寄与しない高速の微粒子（デブリ、図 11 の筋）が多数発生する。1990 年代に EUVL が実用化できないとされた理由である。もう一つの方法に電極の間に気体を流してパルス高電圧を印加して放電させる放電プラズマ（DPP: discharge-produced-plasma）がある。2000 年頃には、LPP より安価でデブリがない DPP が有望とされた。

日本の国家プロジェクトは、当初ニコンとキャノンが主要な役割を果たし、レジスト評価用露光装置も納入したが、2010 年代前半に撤退しており、EUV 露光装置は蘭の ASML が 100 % 独占している。いつまでも実用化されなかったにも拘わらず、巨額の投資を継続して、遂に、半導体製造の段階まで漕ぎつけた ASML には深く敬意を表する。

ASML の投資家向けの Annual Reports（文献 16）に依れば、2017 年から EUV 露光装置の出荷台数が急増している。これを図 3 の左図に示した。TSMC、Samsung、Intel が 2017 年頃から EUVL の本格的導入に着手したことが分かる。

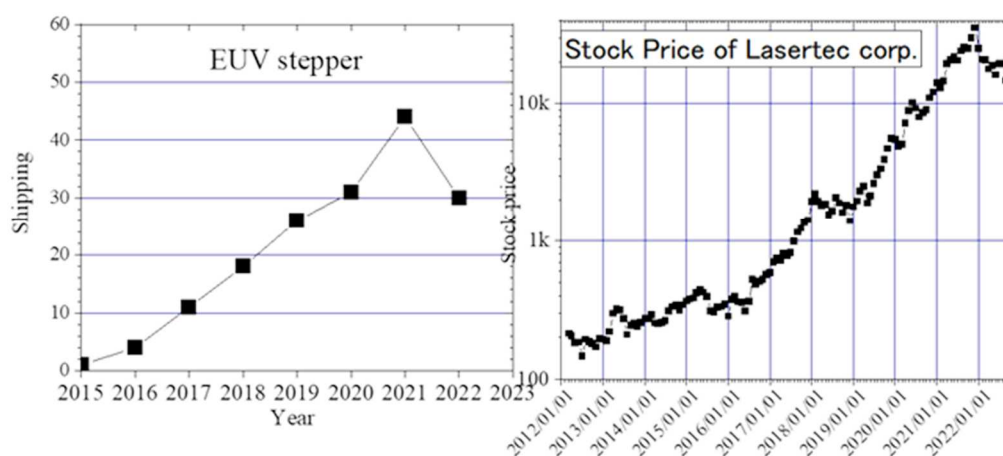


図 3：(左) EUV 露光装置は 2017 年から出荷台数が増えた。(右) EUVL の期待でレーザーテック社の株価が 100 倍になった。

多数の新技术がなければ実用化されない EUVL では、多くの日本企業が活躍している。マスク基板を供給する HOYA と AGC、塗布現像装置を供給する東京エレクトロン、レジストを供給する東京応化工業、JSR、信越化学工業と住友化学等。特に、2017 年 4 月に新製品を発表（文献 17）したレーザーテックは、マスク基板の欠陥検査装置のシェアが 100%である。同社は、NEDO の EIDEC プロジェクト実施中の 2012 年 3 月に東京証券取引所第二部に上場し、2013 年に一部上場した。図 3 の右図に見る様に 10 年間で株価が 100 倍になっている（文献 18）。レーザーテック社への投資家の期待の高さを表す。

2001 年に産業技術総合研究所（産総研）が発足し、夏から半導体 MIRAI プロジェクトが始まったが、筆者が属することになったリソ・マスクグループの研究開発テーマとして、電子技術総合研究所（電総研）から産総研に移行する直前に筆者が考案した欠陥検査法（文献 6）の原理実証が半導体 MIRAI プロジェクトで行われた。それを事業化してくれる企業として名乗り出てくれたのがレーザーテックであり、2006 年から機器納入の協力をしてくれた。2010 年からの EIDEC プロジェクトでは、共同研究者として製品化技術の開発を行った。EUVL が生産技術として使用される展望が定かではない時期に事業化を前提に協力をしてくれ、基本原理を立派な検査装置に迄完成させ（文献 19）、EUVL の実用化を支えてくれていることに感謝する。

本稿では、原理実証機による研究から製品化までの経緯を簡単に振り返り、欠陥検査法の着想を生み出す背景になった電総研での研究と EUVL に深く関わるようになった経緯を詳しく紹介する。第 2 章で産総研方式を説明し、第 3 章で MIRAI での研究を紹介する。第 4 章で EUVL の最初の提案が電総研で行われたことを紹介する。産総研方式の着想に直接つながった研究を第 5 章で紹介する。ArF 液浸までは無数の人々の努力によるカイゼンで進歩してきたが、EUVL は、発想を根本から変える多くの革命技術で構成される究極のリソグラフィー技術である。その一端の筆者が行った提案群を第 5 章で紹介する。一人の研究者の考案が巨大産業に貢献できている幸運の要因を第 6 章で考察した。

2. 多層膜マスク基板の欠陥検査法の考案

2-1. 多層膜鏡の欠陥検査の特異性

160 nm 以下の波長では、バンドギャップ励起により伝導帯に電子が励起され、原子の移動が誘起され、固体の結晶格子の損傷が激しい。着色化が激しく光を透過するレンズは寿命が短く、年単位の連続運転が要求されるリソグラフィーには堪えられない。

幸い 13.5 nm に於いては、L 吸収端が 12.3 nm である Si による減衰が小さいので、大きな吸収係数の金属との多層膜で、70%もの高い反射率が可能である。6.9 nm 周期で Si/Mo 多層膜を積層すると、個々の界面での極めて小さい反射波も、数十層での反射波を干渉させることで 13.5 nm で高い垂直入射反射率が得られる。

固体（多層膜）の内部に 200~300 nm も侵入した光の反射で高い反射率を得ることが、

数 nm の最表面で反射させる通常の反射鏡との決定的な違いである。通常の反射鏡では、最表面さえ清浄であれば良好な反射が得られるが、多層膜鏡では、表面から 200~300 nm の内部の不純物や欠陥が反射光に影響を及ぼす（図 4）。多数の界面からの反射波の内、ある複数の界面の反射波の位相が変調されることから、位相欠陥と呼ばれる。

2-2. 新方式誕生前夜

原子間力顕微鏡（AFM）や電子顕微鏡を用いれば、表面の nm の欠陥を検出することは可能である。200 nm の紫外レーザー光を用いた検査装置が製品化されている。

半導体検査装置でシェア 50%を占める KLA-Tencor 社は、電子ビームでのマスクの欠陥検査装置を開発した。しかし、これらでは多層膜内部の位相欠陥の検出はできない。

露光波長を用いれば、検査光が多層膜内部に侵入するので、内部の欠陥が検出できる。鏡面反射光を阻止して欠陥による散乱光のみを検出する「暗視野法」を用いれば、高感度な検出が可能になる。放射光からの露光波長を用いた暗視野法での欠陥検査の研究は米国の Lawrence Berkeley 国立研究所で行われていた。多層膜内部ではなく表面に置いた欠陥ではあったが、60 nm の大きさの欠陥が検出できたと 2000 年に報告された（文献 20）。

EUVL の研究開発が日米欧での巨大プロジェクトで始まった当初から現在に至るまで、常に最大の課題とされたのは EUV 光源のパワーであった。そして、2000 年当時、無欠陥マスク基板の開発に必須の、位相欠陥の検査技術が、光源問題と並ぶ show stopper（舞台を中断させる致命的な問題）とされた。Berkeley の研究でマスク基板の欠陥検査法は問題解決、とはならなかった理由は、検査速度の遅さだった。

Berkeley での研究では、 $2.5\ \mu\text{m} \times 4\ \mu\text{m}$ の領域の 60 nm の欠陥は検出できたが、検査速度は 1cm^2 換算で 30 時間と報告された（文献 20）。大きさが $140\text{mm} \times 140\text{mm}$ のマスクの全面検査に、6,000 時間を要する計算になる。実用的であるには、検査時間 2~3 時間が必要だとされたので、2,000~3,000 倍の高速化が必要だった。彼らの光源だった放射光自体が巨大な施設で実用的でない上に、更に数千倍の高速化が必要だったので、露光波長による検査の展望はなかった。

2-3. MIRAI のために考案

筆者は、電総研に入所時、大出力レーザーの研究に従事した。その後、開発した大出力レーザーの応用として、固体に照射して生成された LPP の研究を行い、数百万度のプラズマから輻射される X 線を利用した X 線顕微鏡の研究を行い、LPP を増幅媒質とするいわゆる

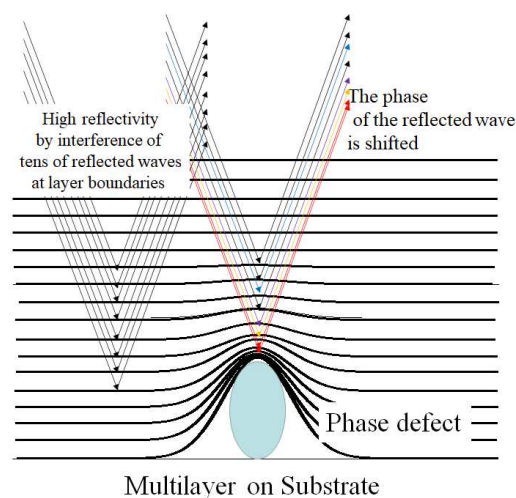


図 4：多数の反射波の干渉で大きな反射率になる多層膜鏡では、深部の位相欠陥の検出が必要。

る X 線レーザーの研究を行い、X 線レーザーの最有望の応用として、EUV 光を照射する光電子分光法、EUPS (EUV excited photoelectron spectroscopy)、を考案した (文献 21)。EUPS システムを開発・完成後は EUPS に依る表面分析を主たる研究としたが、1990 年代末に米国での EUVL 用光源の開発が始まってからは、第 5 章で紹介するように、EUVL の技術開発にも深く関わっていた。2001 年に発足した産総研を研究場所として始まった半導体 MIRAI プロジェクトに参加することになった筆者の担当課題は、EUPS に依る微細欠陥の同定であった。

MIRAI の発足 1 年前の kick off meeting で、筆者が加わることになるリソ・マスクグループのメンバーと会い、それぞれの担当課題を教えてもらった。その時、グループリーダー予定の寺澤恒男氏はマスク基板の欠陥検査技術を開発したい、具体的な手法は 1 年後のプロジェクト開始後に検討を始める、とのことであった。EUVL 開発に深く関わってきたことから、EUVL の実用化を阻む様々な要因の解決を使命としていた筆者には、show stopper の一つだったマスク基板の欠陥検査技術問題が解決できる場に参加できることはこの上ない幸いであった。

2-4. 発散光源の露光波長で照明したマスク表面をシュバルツシルト光学系で結像

考案したのは図 5 に示す配置 (文献 6) である。凹面鏡と凸面鏡の対からなるシュバルツシルト光学系 (SO: Schwarzschild optics) で欠陥からの散乱光を捕集する。検査面からの鏡面反射光を凸面鏡で遮蔽して、欠陥からの散乱光のみからなる被検査面の暗視野像を CCD に結像する。プラズマからの発散 EUV 光を捕集し、凸面鏡の背面に設置した反射鏡で反射させて、マスク基板の広い領域を照明する。

2-4-1. ショットノイズ

欠陥が検出できる条件はショットノイズの計算で求まる。

CCD カメラの 1 画素に入る、欠陥からの光子数を I_{def} 、基板粗さ等起因の散乱光の光子数を I_{pix} と置くと、

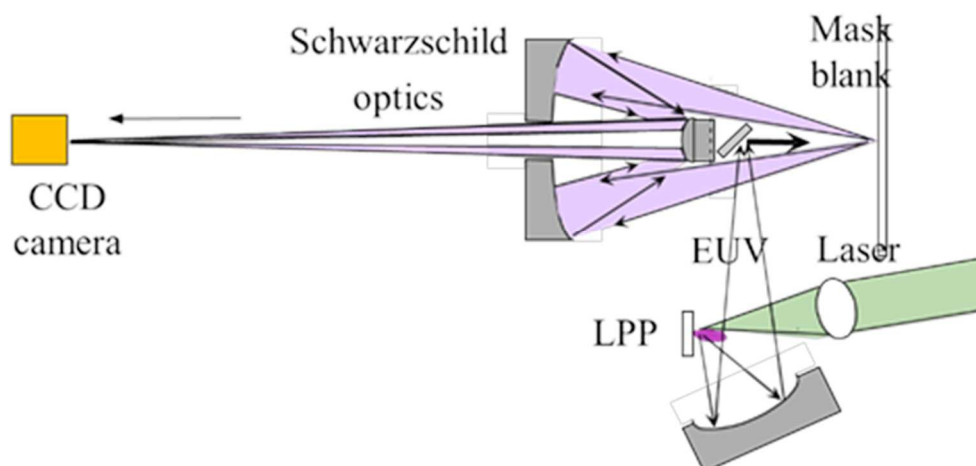


図 5：産総研方式の位相欠陥検査法。大きな照明領域を大きな遮蔽 NA で暗視野結像する。

$$I_{def}^{1/2} - I_{pix}^{1/2} > 3 \quad \text{————— (3)}$$

になれば、標準偏差の 3 倍の精度で、欠陥が存在すると判定できる（文献 6）。検出感度を上げる、つまり小さな I_{def} を識別するには、 I_{pix} を小さくする。

2-4-2. 大きな遮蔽 NA の暗視野結像

Abbe の回折限界（(2) 式）は結像の逆の散乱にも当て嵌まり、真空中（ $n=1$ ）で照明した時の散乱光の広がり全角 θ の下限は次式で与えられる。

$$\theta = \lambda/d \quad \text{————— (4)}$$

散乱体の半径を r ($=d/2$)、広がり半角を $\theta_{1/2}$ と置くと $r \theta_{1/2}$ はエミッタンス（emittance、発散度）と呼ばれる。Abbe は、emittance の下限は波長の 1/4 だと言う。

基板の粗さ（ $d \gg \lambda$ ）による散乱光の角度広がりには小さく（ $\theta \ll 1$ ）、微小欠陥（ $d \sim \lambda$ ）からの散乱光の広がり角は大きい（ $\theta \sim 1$ ）。小さな角度への光を遮断して I_{pix} を小さくすれば微小欠陥が検出できる。SO の凸面鏡を可能な限り大きくすることで I_{pix} が小さくなり、小さな欠陥信号 I_{def} が検出できる。形状が異なると散乱光の角度分布も異なるので、散乱光の角度分布を調べれば、散乱体の形状情報が得られる。

欠陥検査に於いては、転写されない欠陥を見ないことは、転写される欠陥を見逃さないことと同程度に重要である。多層膜表面の粗さは転写されない。レジスト上に転写されるかどうかは、転写光学系の NA で決まる。鏡表面の平坦度が高いと、表面粗さに起因する散乱光は、強度が小さいだけでなく角度広がりも小さい。散乱光を捕集する SO の NA を露光装置の NA と一致させれば、転写される欠陥だけが検出される。本手法の大きな特長は、検査後に修正作業を行うかの確認が必要になる偽欠陥を見ないことである。

2-4-3. CCD の読み出し速度を小さくするための大きな画素

広い領域の検査時間は、画素数と掃引速度で決まる。画素数が少なければ低掃引速度でも短時間で検査が終了するが、分解能を高くして画素数を増やすと大きな掃引速度が必要になる。検査領域の大きさが L で画素の大きさが Δx の場合、画素数は $N = (L/\Delta x)^2$ になる。 $L = 140 \text{ mm}$ で $\Delta x = 140 \text{ nm}$ ならば、 $N = 10^{12}$ である。一時間で走査するなら画素読み出し速度は 300 MHz が必要である。しかし、CCD カメラの読み出し速度を大きくすると雑音電気信号が大きくなる。当時の実用的な読み出し速度は 10 MHz だった。

全画素の信号を 10 MHz で 1 時間で読み出し終えるには、画素総数を 1/30 に減らす必要があり画素を 5.5 倍に大きくする必要がある。3 時間が許容されるなら、3.2 倍つまり 450 nm に大きくする必要がある。

2-4-4. 大パワー照明のための大きな照明領域

各種光源にはそれぞれの輝度がある。高速測定には大光量の照明が必要である。大光量を得るために、光源の面積を大きくして光源からの光を捕集する立体角を大きくすることになる。光源の面積と捕集立体角の積はエタンドュ、etendue、と呼ばれ、 $\text{etendue} = (\pi \times \text{emittance})^2$ である。像転送に於いて保存されるので、大きなパワーでの照明を行うためには被検査多層膜マスク基板の広い領域を大きな立体角で照明する。多数の画素からの暗視

野 EUV 信号を背面照射型 CCD カメラに記録する。

2-4-5. Berkeley の手法の問題点

Berkeley の手法の第一の問題点は、欠陥からの散乱光の検出立体角が $NA = 0.034$ でしかなかったことである（文献 20）。 $NA = 0.2$ の SO を使用すれば、検出される散乱光強度は 36 倍になる。彼らの小さすぎる NA は、雑音信号 I_{pix} が小さくなかったという問題点もある。 I_{pix} は表面粗さで決まる。彼らの実験でどの程度の大きさだったかは推測できないが、相当な問題だった可能性がある。

第二の問題点は、用いた放射光が、 $etendue$ が小さくとても暗い光源であることである。放射光からの光の指向性は高い。1 GeV の偏向電磁石放射光の広がり角は 0.5 mrad である。このために、その立体角内での光源輝度は高い。しかし、SO での暗視野照明を行うとき、照明光の立体角は 100 mrad 迄広げることができるが、広い捕集角の光学系を用いても放射光からの光量は増えない。広い立体角で積分したときの強度は極めて低い。産総研方式で用いる LPP から放射光より遥かに大きな光量が得られることを 5—1 で詳しく説明する。

2-4-6. 必要な光量

必要な光量を（3）式で定量的に見積もることができる（文献 6）。

$$nS_{def} > 36 R_{pix} (S_{pix}/S_{def}) / (R_{def} - R_{pix})^2 \quad \text{————— (5)}$$

n は面積当たり光子数、 S_{pix} と S_{def} は画素と欠陥の面積、 R_{pix} と R_{def} は画素と欠陥の実効反射率である。 $S_{pix} = 300 \text{ nm} \times 300 \text{ nm}$ 、 $S_{def} = 30 \text{ nm} \times 30 \text{ nm}$ 、 $R_{pix} = 0.01$ 、 $R_{def} = 0.6$ の場合、 $nS_{def} > 100$ になる。142 mm x 142 mm のマスク全面に照射すべき光子総数 N は、 $N > 100 \times (142 \text{ mm} / 30 \text{ nm})^2 = 2.2 \times 10^{15}$ になる。反射率 60 % の多層膜 5 枚で反射させる時、光源は $2.2 \times 10^{15} / 0.6^5 = 3 \times 10^{16}$ の光子を供給すればよい。LPP がこの輝度を持つことを 5—1 で説明する。

$$N \propto 1/S_{def}^2 \quad \text{————— (6)}$$

であり、マスク全面に照明すべき全光子数 N は検出すべき欠陥の大きさの 4 乗に反比例して大きくなる。5—2 で、X 線顕微鏡に於ける空間分解能と X 線暴露量の間にも同じ比例則があることと、被ばく量の莫大さは凄まじく生物試料が瞬時蒸発することを述べる

（4）式で見る様に、散乱光の広がり角 θ は波長に比例し、露光波長より長波長の光は雑音 I_{pix} を大きくするので、高感度のためには分光が必要である。産総研方式では、最低 4 枚の多層膜で反射され、多層膜の反射スペクトルに依る分光が行われる。分光器を別途用意することなく、白色光源が使用できるのも実用上は重要である。

2-4-7. まとめ。産総研方式の構成要素

以上をまとめる。検査時間が読み出し速度で律速されることから 1. 可能な限りに画素サイズを大きくすることが決定的に重要である。大きな画素中の微小欠陥を検出するには 2. 遮蔽 NA を可能な限り大きくした暗視野結像が必要である。3. 必要な光子数はショットノイズの計算から求まる。限られた光源輝度で高速の検査を行うには、4. 照明の $etendue$ を可能な限り大きくする。つまり、照明領域の画素数を可能な限り多くする。この照明には発散光源が必要である。

1 のために高速読み出し速度の CCD カメラを用いる。2 のために SO を用いる。4 のために LPP が必要である。ショットノイズの計算から LPP で 3 時間内での検査が可能である。これらを組み合わせたのが、図 5 の産総研方式である。

これらの構成要素は、筆者の電総研時代の研究で蓄積されていた知見であった。詳細を第 5 章で紹介する。検出可能な欠陥サイズや顕微鏡の空間分解能がショットノイズで決まることを学んだ研究を 5-2 で紹介し、EUVL でのレジスト感度もショットノイズが決まることを 5-4-3 で説明する。高速検査や高いスループットの EUV 露光にはエタンドュの大きな LPP を光源とすべきことを学んだ研究を 5-1 で紹介し、検査速度を律速する CCD カメラの読み出し速度を学んだ経緯を 5-3 で紹介する。産総研方式を考案する動機である EUVL とのかかわりと EUVL が究極のリソグラフィーであることを 5-4 で説明する。LPP の輝度から EUVL の現状の光源パワーが限界に近いことを 5-4-6 で説明する。

(本稿で用いる技術用語③)

ショットノイズ：ある事象が発生する回数 N は、 N が大きくなると正規分布に近づき、標準偏差 σ は $\sigma = \sqrt{N}$ になる。平均値から 3σ 以上に離れた回数が発生する確率は 0.3% である。 $(I_{def} - I_{pix}) > 3I_{def}^{1/2} + 3I_{pix}^{1/2}$ になる確率は 0.3% 以下であり、 I_{def} と I_{pix} が異なると判断する基準にすることが多い。 $(I_{def} - I_{pix}) > 3(I_{def}^{1/2} + I_{pix}^{1/2})$ を変形して (3) 式を得る。

$I_{def} = n R_{def} S_{def}$ で $I_{pix} = n \{R_{pix} (S_{pix} - S_{def}) + R_{def} S_{def}\}$ である。これを変形、近似して (5) 式を得る

3. 半導体 MIRAI での研究。原理実証から製品化まで

3-1. 開発に着手する迄の勉強会

考案した方法で、検出すべき小ささの欠陥のマスク全面の検査が実用的な検査速度で行えることは、理論計算から疑いの余地はなかったが、企業に製品化を依頼する前には実際の nm 位相欠陥を検出して見せなければならぬ。MIRAI のリソ・マスクグループに参加させてもらいマスク基板の欠陥検査技術を開発するメンバーに加えては貰ったが、筆者の役目は実証実験で必要となる EUV 光の供給であった。実際に実証を行うのは企業から出向のメンバーである。彼らが研究をする気になってもらわねばならない。彼らはマスク検査に関する長年の経験を持っており現場で必要とされることを熟知している。経験のない筆者が理論を説明しても一蹴されることが懸念された。出願した特許の方式を提案するのに時間をかけた。

2001 年夏に MIRAI が始まると、kick off meeting で寺澤氏が話した様に、開発すべき新方式を探る議論が始まった

NEDO の半導体 MIRAI プロジェクトの 2001 年度の提案書での「極紫外光欠陥検査技術」の計画は下記の通りであった。下線は筆者が施した。

「第 1 期では、まずシミュレーションによる欠陥の影響評価、及び小型投影光学系によるマスクパターン投影評価により、欠陥分類と致命欠陥の明確化を行う。投影評価には、

光源や結像光学系が必要であるが、ここでは既存の簡単な 2 枚鏡光学系を用いて評価を行う。露光フィールドや露光時間を重要視せず、転写パターン寸法を変動させる致命欠陥の分類のみに重点を置く。

第 2 期では、多層膜マスク及びブランクスに前記極紫外光を照射する簡易照明光学系の試作、及び反射光と回折光を捉えるセンサを含めた検査光学系の試作を行い、欠陥検査の分解能を向上させると同時に、位相欠陥検査の原理検証を行う。

本研究開発では、(筆者註：海外での)先駆的な研究成果を把握すると同時に、新たな極紫外光源を用い検出方法の基礎検証を行う。散乱光検出か結像検出かの選択、検査光の照明領域と検出すべき欠陥サイズ及びセンサの感度との相関、等が検討項目となる。」

「為せば成る。為さねば成らぬ何事も。成らぬは人の為さぬなりけり」は上杉鷹山の言葉であるが、為さねば成らぬ強い意志が表明されている。

2～3 か月に亘る週に 1 回の、海外での先駆的な研究成果の把握を行った勉強会に筆者も加わった。従来研究の調査検討が終わったのちに、おもむろに筆者の考案の紹介を行った。素晴らしい！という声はなく、長年欠陥検査に関わってきた経験から、欠陥の「形状」と位置が高い空間分解能で見えないことは大いに問題だ、とのコメントが出された。しかし、彼らは筆者の方法の原理実証実験を始めてくれた。

3-2. 初年度は研究費ゼロ

シミュレーションによる欠陥の影響評価が研究計画だったので、初年度には実験装置を購入する予算はゼロであった。実験スペースも確保されていなかったもので、筆者の EUPS グループが 2-7 棟に持っていた実験スペースの一角に、加速予算で簡易クリーンルームを作った。図 6 に概念実証機の配置図と EUV 光源側から見た装置の写真を示す。

光源ユニットは筆者が設計した。簡易クリーンルーム内の様子が見えるように、ガラス窓を設けた。壁に穴をあけて、欠陥検査用のレーザーを購入するまでは、EUV 光源研究で使用するレーザーから LPP を生成するためのレーザーパルスを供給した。散乱光捕集用の

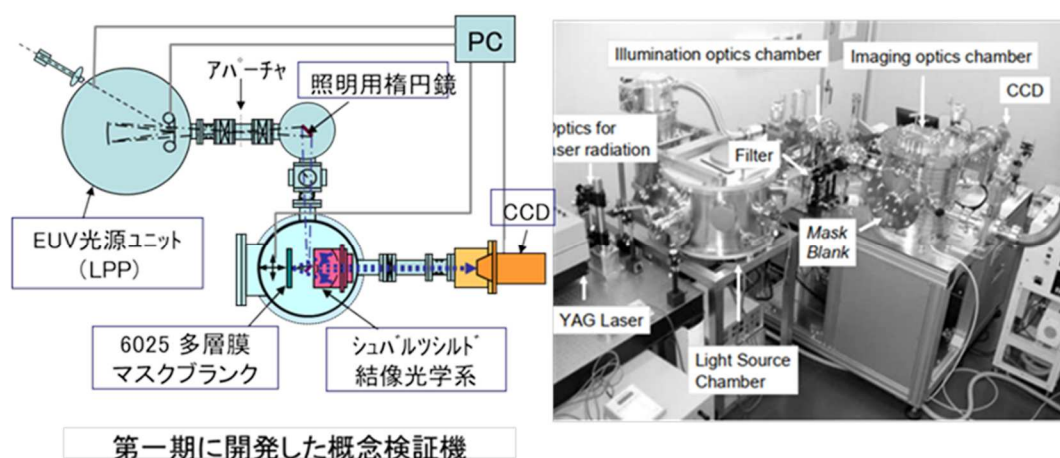


図 6：(左)マスク基板欠陥検査法の概念実証機の配置図と(右)光源側から見た装置の写真

SO は、寺澤氏の交渉で、NTT の放射光施設で使われていたものを譲り受けた。

MIRAI の大半の研究は、旧資源環境技術総合研究所（西事業所）の野球場に MIRAI のために建設されたスーパークリーンルーム（SCR: Super Clean Room）で行われ、研究員の居室も SCR にあった。マスク基板欠陥検査の原理実証の実験を担当した Intel から出向の手塚好弘氏は、毎日、SCR から旧電総研の 2-7 棟に通った。

3-3. HOYA が検査用基板を作成

筆者は原理は考案したが、あとの全てを、企業から出向した研究者たちが実施した。

(3) 式に示した様に、欠陥検査の感度は基板表面の粗さ等起因の信号 I_{pix} の大きさに決まる。粗さの小さい高品質のマスク基板の調達は決定的に重要である。寺澤氏は、EUVL 用マスク基板事業に関心を示していた HOYA と交渉し、原理実証実験用の基板を提供してもらった。筆者も一度、HOYA 社での打ち合わせ会議に加わった。

HOYA に作成してもらった原理検証用マスク基板の、CCD 画像を図 7 に示す（文献 22）。作り込んだ欠陥の全てが結像されている。欠陥が大きいほど信号は大きい。また、偽欠陥信号もない。

図 7 の下左図の左端に見るように、欠陥を作り込んでいない場所にとっても小さなしかし背景信号よりは十分に大きい信号が見えた。その場所を AFM で見ると、大きさ 70 nm、高さ 2 nm の塵があった（文献 22）。これは当時、検出された最も小さな欠陥であった。背景信号との比から、この半分の体積の欠陥が検出できることになる。0.5 mm x 0.5 mm の領域の検査時間は 2 秒であった（文献 23）。これを 1 cm² 当りに換算すると 800 秒で、Berkeley の報告の 30 時間（文献 20）の 1/135 であった。CCD カメラの読み出し速度と EUV 強度の

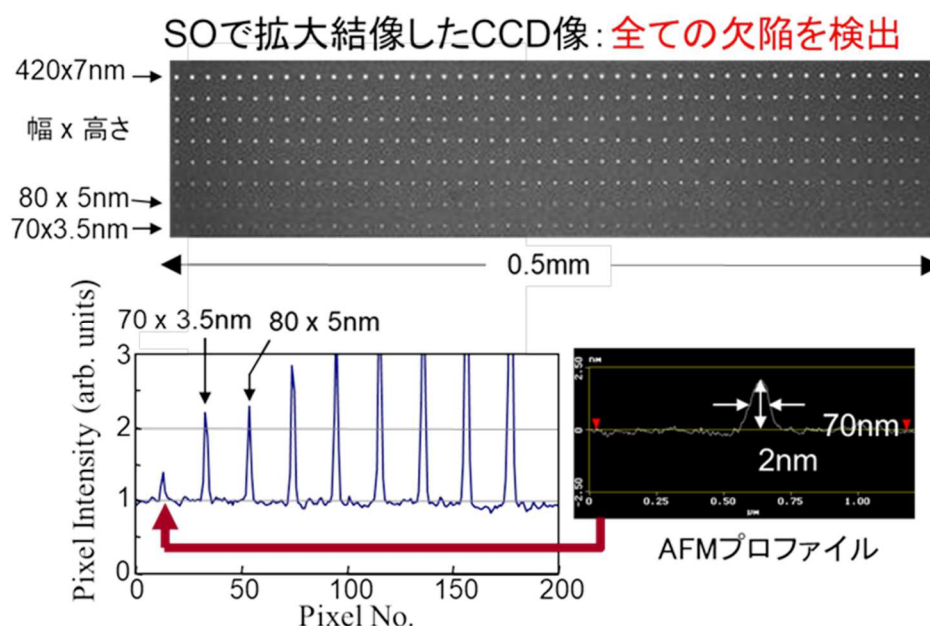


図 7: (上)作り込んだ全ての欠陥が見え、偽欠陥はない。(下左) 欠陥信号は雑音信号の 2 倍以上だった。左隅の意図せぬ信号の場所に(下右)大きさ 70 nm 高さ 2 nm のゴミがあった。

増加で一桁以上の速度向上は容易であった。

背景信号の大きさは、多層膜を成膜するガラス基板の粗さで決まる。ガラス基板の平坦度が高まれば背景信号 I_{pix} が小さくなって、検出できる欠陥の大きさ I_{def} が小さくなる。ガラス基板の平坦度は背景信号の大きさ I_{pix} に反映される。産総研方式の欠陥検査法は、nm サイズの欠陥が検出できるだけでなくガラス基板の平坦度のマスク基板全体に亘る分布も高速で評価できる。HOYA の高品質のマスク基板の開発を大きく助けているだろう。

3-4. 欠陥検査装置の製品化、事業化に向けて

超微細欠陥が検出できる感度があるだけでなく、検査時間も十分に短く、製品化には問題がないことを、寺澤氏と手塚氏が EUVL 及びマスクの毎回の国際会議で報告し、高い評価を受けていた。しかし、事業化に乗り出してくれる企業を探すのは容易ではなかった様である。寺澤氏が奔走した。Lasertec 社が事業化に向けて協力してくれると寺澤氏から報告を受けたのは MIRAI 第 II 期の終わりころだった様に思う。研究テーマを再編して 2006 年から始まった MIRAI 第 III 期ではプロジェクトリーダーが廣瀬全孝氏から渡辺久恒氏に変わった。筆者も MIRAI から離れた。

製品化を目指したシステムは SCR 内で作られ、Lasertec 社が協力を始めた。EUV 光源を商用 DPP に変えたと聞いた。2010 年度から NEDO の EIDEC プロジェクトが始まった。4 つの研究テーマがあったが中心はマスク基板欠陥検査装置の開発であり、Lasertec 社内が研究実施場所であった。筆者は一年間 NEDO の担当プログラムマネージャーとして開発のお手伝いをし、開発現場を見学した。嬉々として筆者に説明してくれた開発担当の宮井博基氏（文献 19、24）を頼もしく思った。

4. EUVL の最初の提案は電総研彙報の鳳紘一郎、谷野博史論文

1990 年の Bell 研での 50 nm のパターン転写の報告（文献 25）で EUVL が脚光を浴びた。Bokor らが電総研に来て彼らの成果を宣伝した。10 人程度が入れる狭い輪講室での講演を筆者も聞いたが、歴史的意義は理解できていなかった。その 2~3 年後に筆者が EUVL の旗振りをするようになることも知る由はなかった。

日本の EUVL 研究で中心的役割を果たしてきた NTT の木下博雄氏らは、前年に 500 nm パターンの転写を報告している（文献 26）。彼らは 1986 年 9 月に EUV 照射での縮小転写の特許（文献 27）を出願しており、これが最初の EUVL の提案だとされてきた。

しかし、実は、1985 年の電子技術総合研究所彙報 第 49 巻 12 号に掲載された、鳳紘一郎氏と谷野浩史氏の論文（文献 28）が EUVL の最初の提案である。木下氏らの特許出願の丁度 1 年前に受理されている。

1980 年に Spiller らは、多層膜で 10 %の垂直入射反射率を報告した（文献 29）。これをきっかけに多層膜鏡の利用の提案が出された。例えば、宇宙研究用の SO 配置の X 線顕微鏡の提案があった（文献 30、31）。

木下らの特許は、**5-1-1**で紹介する顕微光電子分光の模式図（図8）中のLPP光源が、放射光で照明されたマスクに置き換わったSOを使った縮小光学系の提案であった。しかし、**2-4-3**と**2-4-4**で説明した様に、実用的なスループットのためには、露光領域は大きくなければならない。SOで高解像度が得られる領域は狭い。高空間分解能が得られる領域のetendueは小さい。**5-1-2**で説明する様に放射光のetendueは小さいので、放射光を光源にする場合にはSOで十分だが、スループットが小さすぎてリソグラフィーには適さない。実用的なリソグラフィー技術であるにはLPPのetendueの大きさを活かせる転写光学系でなければならない。このことを**5-1-2**で詳しく論じる。

鳳と谷野もマスク照明のetendueまでは考慮していないものの、UV領域で行われていた3枚系での5:1縮小転写系をEUV領域に展開することを提案しており、リソグラフィーの光学系としては実用的である。更に、木下らが言及しなかったマスク、レジスト、光源についても簡単な考察を行っている。光学系を含め、その後のEUVLの指針になり得た重要な提案を行った。1985年の鳳・谷野の考察がEUVLの最初の提案であった。

筆者は鳳氏からX線縮小露光の検討に加わる様に誘われたが、お断りした。**5-4-1**で紹介する様に当時筆者はLPPによるX線等倍露光の可能性を探っていたが、収差の大きい斜入射光学系のためのX線域で縮小露光の可能性はないと考えたからである。40年弱を経た半年前にふと、その後どうなったか気になり、金山敏彦氏に問い合わせ、初めて鳳・谷野論文を知った。

Barbee ミラーと呼ばれた多層膜を筆者が知ったのは遅く1986年の英国留学中だった。Reading大学に作成して貰った多層膜をX線レーザー実験でLPPのEUV分光に利用したが、垂直入射鏡の存在を知っても1990年代半ばまで筆者の頭にEUVLが思い浮かぶことはなかった。固体物性が専門だった鳳氏がEUVLの着想をしたきっかけについて金山氏は、超LSI共同研究所の企画室に鳳氏が出向したときに縮小露光を知ったのだろうと言う。

超LSI研は、半導体ライバル会社5社の約20名ずつと電総研の研究者が集まり電総研の垂井康夫氏を所長とした1976年から1980年に存在した国家プロジェクト研究所である（文献36）。超LSI研では、1967年に電気試験所（1970年に電総研に改名）で完成されていた電子ビーム描画装置を高度化した。この技術に基づく日本のマスク描画装置は、その後の技術開発もあって世界の90%を超えるシェアを占める（文献37）。移動してウエハー上のマーカー位置をレーザー干渉計で読み取って描画するという電総研が産んだ、ステップ・アンド・リピートの機構部分を試作したニコンは、1970年から同社が持っていた光露光装置のステッパー構想に取り入れた。g線ステッパーは超LSI研で開発されたVL-SR2が製品化されたとのことである（文献36）。その後の改良でニコンとキャノンはステッパー市場の過半のシェアを占めた。電総研（1969年までの電気試験所を含む）の技術が、1980年代以降の日本の半導体産業の隆盛の基盤になった。

ステッパーの誕生を目の当たりにした鳳氏がEUVLを着想するのは、自然である。

5. 位相欠陥検査法を生み出した研究

産総研方式の欠陥検査の高速化のための工夫は、1. CCD カメラの読み出し速度に合わせて画素サイズを大きく設定したこと、2. ショットノイズ計算が教える必要照射量を最小化するために遮蔽 NA を大きくしての暗視野結像、3. 大パワー照明のために広い領域を照明し、大きなエタンドュのプラズマ光源を使用すること、である。筆者の電総研時代の研究で蓄積された知見での必然の構成だった。

プラズマ光源の明るさの知見を得た研究を 5-1 で、ショットノイズ関連の知見を得た研究を 5-2 で、CCD カメラの読み出し速度関連の知見を得た研究を 5-3 で紹介する。

筆者の担当課題ではなかった位相欠陥検査法を考案したのは、EUVL 実用化の諸々の障害を取り除くことが筆者の使命だった（文献 15、32~35）からである。EUVL が究極のリソグラフィーであることを理解頂くために、EUVL を構成する多くの革命技術の一部としての筆者の提案群を 5-4 で紹介する。

5-1. LPP を光源にする EUPS

産総研方式で Berkeley での研究の 3 桁以上の高速な検査が可能になる三つの要因のひとつである LPP の高パワー性を説明する。

筆者は、X 線レーザーの国際会議で、X 線レーザーの最有望応用として顕微光電子分光を提案した（文献 38）。理由は、光源の狭帯域性が威力を発揮することと、波長が水の窓（2.3~4.3 nm）に限定されないことであった。その後、当時の上司、木村錫一極限技術部長に、LPP-X 線源の産業応用を考案する様に促がされ、照明光源を X 線レーザーではなく LPP にする顕微光電子分光、2001 年以降に EUPS と呼ぶことになる方式、を考案した。光源の短パルス性を活かして電子のエネルギー分光を飛行時間（TOF）法で行うことと、分光器の挿入損失を省くため狭帯域線スペクトルを利用する工夫を行った（文献 21）。

5-1-1. 顕微光電子分光法による材料・デバイスの高度分析評価技術

LPP を光源とする顕微光電子分光の実用化技術の確立と応用の開拓のために、筆者を研究代表として国立研究所、大学、企業の 13 グループで、科学技術振興調整費（科振費）による「顕微光電子分光法による材料・デバイスの高度分析評価技術に関する研究」を平成 11 年度から 5 年間実施した（文献 39）。EUVL の実用化を睨んだ多層膜技術と X 線集光光学技術の高度化も目標にした。研究担当者たちが大きな成果を上げたおかげで高い事後評価を受

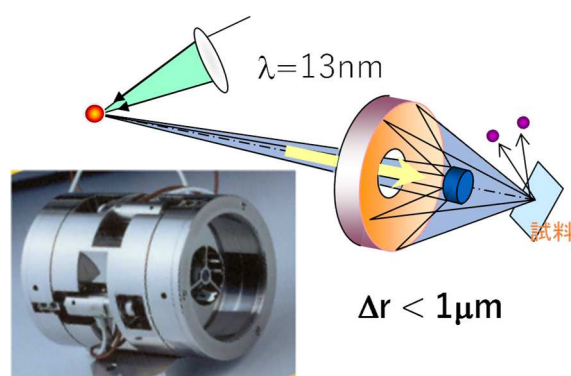


図8：顕微光電子分光装置の模式図。LPPからのEUV光をSOでサブミクロンに集光照射し放出電子をエネルギー分析する。左下は開発した鏡筒。

け、世界への成果発信のための海外の専門家を招いた国際会議を2回開かせてもらった。

EUPS による顕微光電子分光の模式図を図8に示す。LPP からの EUV 光を SO で試料上に集光し、微小領域からの光電子を TOF 分光する。図5に示した産総研方式の欠陥検査法と同じ光学配置で、EUV 光の進行方向は逆である。

顕微光電子分光の集光光学系には SO が最も適する。LPP との相性も良い。図8の左下の写真は、SO の凹凸面鏡の間隔と角度を外部から調整できるように開発した鏡筒で、LPP がサブ μm に集光できた。分担研究者の一人の NTT-AT の竹中久貴氏は多層膜の 6 nm への短波長化技術を開発し、ニコンの村上勝彦氏は 0.1 mm 以下への集光を可能にする鏡面の波面収差の低減化技術を開発した。

科振費での顕微光電子分光技術の研究を経て SO の性能と課題を理解していたので、欠陥検査の光学素子に SO を選択したのは必然だった。科振費の研究での顕微光電子分光の成果があって MIRAI に参加することになった。半導体の顕微光電子分光分析には 4 インチウエハーが分析できる必要があり、そのために図9に示す EUPS 4 を開発した。

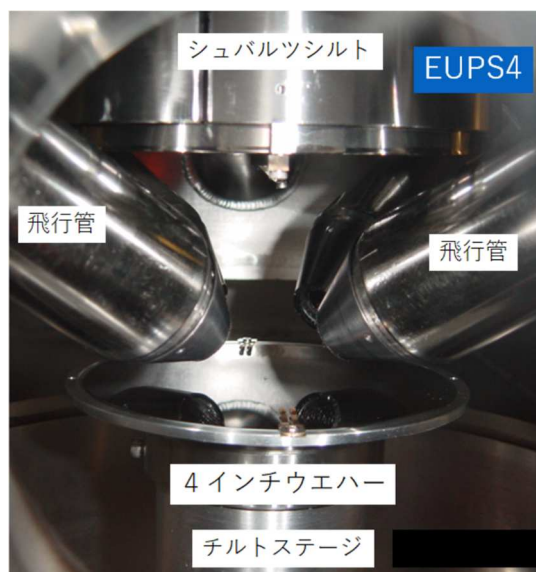


図9: 開発した EUPS4 で 4 インチウエハーの顕微光電子分光ができる。

5-1-2. 高速欠陥検査や EUVL に必要なエタンドュの大きい光源

欠陥検査、EUVL、X 線顕微鏡等の応用に於いて LPP は放射光より遥かに明るい光源であることを説明する。

高エネルギー加速器研究機構の X 線領域の放射光施設フォトンファクトリの放射光はパルス幅が 33 ps でパルス間隔が 2 ns である (文献 40)。放射光が光っている時間の割合、duty 比、は 1/50 程度である。LPP の発光時間は 10 ns 程度と短く繰り返し 1 Hz の場合の duty 比は 10^{-8} と小さいが、LPP の EUV パルスのピークパワーが 2×10^6 倍ならば 1 Hz で放射光の時間平均パワーと同等になる。

各種 X 線源の光源輝度を図 10 に示す(文献 21)。EUPS は水素様ボロニイオンの波長 4.86 nm の $\text{Ly}\alpha$ 線を使う (文献 21)。“B”で示したその輝度は 200 eV の黒体輻射程度で偏向電磁石放射光の輝度より 2 桁高い。

輝度に etendue と波長の帯域幅を乗じればパルスピークでの光量が得られる。フォトンファクトリの emittance は 35 nm rad である (文献 41)。LPP を $NA = 0.2$ ($\theta_{1/2} \sim 0.2$ rad) の SO で 500 nm に集光する場合の emittance は 50 nm rad である。輝度比、duty 比、etendue 比から、放射光と同等の時間平均パワーにするには 10 ns-LPP を数 kHz で繰り返す必要がある。

光電子分光では狭帯域光が必要である。白色光である放射光から狭帯域 EUV 光を得るには回折格子分光器が必要で、その挿入損失は 10^{-4} 程度である。EUPS では狭帯域線スペクトル ($B\text{Ly}\alpha$) を使うので分光器挿入損失がない。10 ns LPP の繰り返し率が 1 Hz でも EUPS の顕微光電子分光は放射光のそれ以上の明るさである。TOF 分光の分光効率は半球型分光器の 3~5 桁高いと考えるので、電子分光まで含めると EUPS の測定速度が数桁大きい。

本稿の主題である欠陥検査の場合は、検査マスク基板上の画素の大きさを 500 nm とし、CCD カメラの画素数を 1,000 x 1,000 とすると、基板上の照射領域の大きさは 0.5 mm x 0.5 mm である。集光の NA を 0.1 とすると emittance は 25 $\mu\text{m rad}$ である。放射光の emittance である 35 nm rad の 700 倍でありエタンドューは 50 万倍である。1 Hz の 10 ns LPP でも放射光の 25 倍以上明るい。これが Berkeley の場合の 3 桁以上の高速化が可能な理由である。

EUVL では、大きなスループットのための EUV パワー増大が最大の課題であり続け、ASML は今でもパワー増大に取り組んでいる。捕集立体角は半球以上の 5 sr でプラズマ径は 200 μm 程度である。Emittance は 500 $\mu\text{m-rad}$ で放射光の 1 万 4 千倍で、etendue は 2 億倍である。それでももっとパワーが欲しいという。

産総研方式で、計測時間 3 時間でどこまで小さな欠陥が検出できるかを 2-4-6 で紹介した計算で見積もる。

多層膜基板上の 1,000 x 1,000 画素 (0.3 mm 角) の領域を $NA = 0.1$ で照明するならば emittance は 15 $\mu\text{m rad}$ である。輝度を 10^{17} (図 10 の縦軸の単位) とし、利用バンド幅を 2 %、1 パルスの幅を 10 ns とすると、1 パルスで 4.4×10^{13} photons が照明される。3 時間運転を 1 Hz で行えば 10,800 pulses であり、 4.8×10^{17} photons が照明される。30 nm 欠陥を検出するのに必要な 4×10^{16} photons の 12 倍である。必要な光子数は検出すべき欠陥の大きさの 4 乗に反比例するので、3 nm 欠陥の検出には 4×10^{20} photons が必要になり、LPP の繰り返し率は 1 kHz が必要になる。より小さな欠陥の検出が求められる時、LPP の繰り返し率を高くする選択肢もあるが、可能であれば、マスク基板の粗さ R_{pix} を小さくする、CCD カメラの読みだし速度を上げる、照明 etendue を大きくする、という対応が好ましい。

放射光では、X 線領域でのコヒーレント光を目指して emittance を回折限界まで小さくし

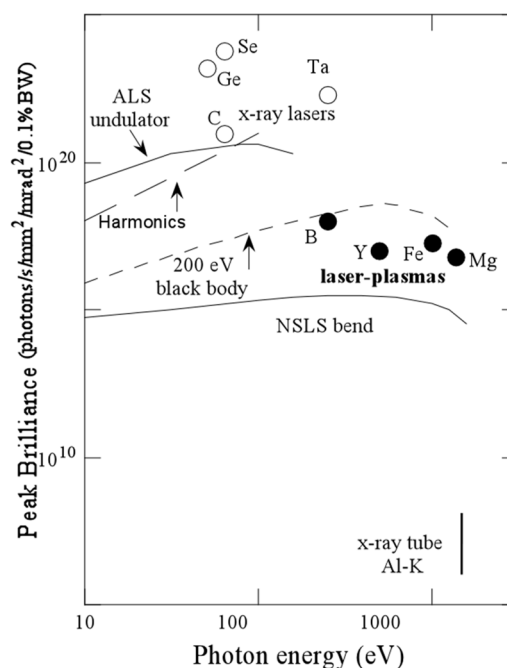


図 10: LPP の輝度は黒体輻射が限界。EUVL 等の応用では etendue が大きな光源が明るい。

ようとする。SPring-8 の emittance は 2.4 nm-rad と小さい (文献 42)。しばしば、EUVL 用の光源として小型放射光が開発できないかとの声を聞く。しかし上述のように、EUVL や欠陥検査等では大きなエタンドューでの照明が必要である。放射光は etendue が小さすぎて EUVL が求めるパワーが取り出せない。スペックルが発生する干渉性は邪魔でもある。

(本稿で用いる技術用語④)

X 線レーザー：離散的電子準位を持つ系で、上準位の電子が下準位の電子より多く、光学遷移が許容であれば、レーザー増幅利得が発生する。上準位から下準位への自然放出速度を与えるアインシュタインの A 係数は準位間エネルギーの 3 乗に比例して大きくなって短寿命なので、同じ大きさの利得を得るには、波長の 3 乗に反比例して大きな速度での励起が必要である。上準位を励起するのに準位間エネルギーに比例する光子エネルギーの励起光が必要であること等も加えて、レーザーの短波長化には波長の 4.5 乗に反比例するパワーの励起源が必要である。X 線レーザーと呼ばれた波長 20 nm 以下でレーザー利得を得るには、極短パルスの巨大レーザーで高密度高温の LPP を作ることになる。上準位を励起する方式として、電子衝突励起方式と再結合励起方式の研究が行われた。

5-2. X 線顕微鏡とショットノイズ

ショットノイズを理解することになったのは X 線顕微鏡研究を通じてであった。

素粒子実験用の加速器でのエネルギー損失に過ぎなかった放射光を真空紫外光源とする物性研究が 1960 年頃から始まり、1975 年に、放射光専用リングとしては世界初の施設である SOR-RING が田無の核研で立ち上がった (文献 43)。筆者の出身の大学の研究室は瀬谷・波岡型真空紫外分光器を武器にして真空紫外光でのイオン結晶などの研究をしていた関係で、SOR-RING の建設に深く関わった (文献 43)。電総研の就職を考えもしなかった時に田無を訪れていた。筆者の出身大学の研究室の先輩達は岡崎分子研の UVSOR の施設長を務めたり、SPring-8 の建設に関わるなど、放射光の分野で大活躍する。先輩たちは LPP が強力な X 線源であることを喧伝する後輩が嫌いである。

放射光の有望応用として Spiller らによる X 線顕微鏡の研究が行われる様になった (文献 44、45)。生物の構造は炭素で構成されるが、電子顕微鏡観察の際は、70% を占め構造を持たない水を除去しなければならない。瞬間凍結などの処理の際に構造を破壊する恐れがある。炭素の K 吸収端 (4.3 nm) と酸素の K 吸収端 (2.3 nm) の間の、いわゆる水の窓の X 線で照明すれば、水中で活動中の生物の微細構造が観察できる、というのが X 線顕微鏡の謳い文句である。X 線レーザーの応用目的は X 線顕微鏡だった。

5-2-1. ショットノイズで決まる空間分解能

X 線顕微鏡で空間分解能、 d 、を得るための X 線照射量、 E_x 、は、ショットノイズの計算から求まる (文献 46)。 $h\nu$ は X 線の光子エネルギーで、 α は生物試料の吸収係数である。

$$E_x \sim 16 h\nu / \alpha^2 \delta^4 \quad \text{————— (7)}$$

2-4-5 で導いた (6) 式と同様に、照射量は空間分解能の 4 乗に反比例する。医療 X 線診断の空間分解能を上げ過ぎてはいけないことを教える。

高空間分解能のための暴露 X 線量は莫大で 1 回の観察で細胞は死ぬ。深刻なことは、温度上昇があまりに大きく激しい熱膨張が始まることである。構造が変形する前に露光を終わらせねばならない。30 nm 分解能のための X 線量では露光時間は数十 ps 以下でなければならないとの計算があった（文献 47）。

パルス励起が必須であるとの理論を受けて、レーザー核融合実験用に開発した大出力硝子レーザーシステムを使って、筆者は 1980 年代後半から X 線顕微鏡の研究を行った。

図 11 は、レーザー照射時の様子である。水中で活動する生物試料を入れた筒を直径 50 cm 程の真空容器内に置き、試料から 1 cm 程の距離の金属板にパルス幅 0.5 ns、パルスエネルギー数 J のレーザーを照射して LPP を生成した。露光後にレジストを現像しレジスト表面の凹凸形状を AFM で読み取った。像の高さから試料の X 線吸収率が分かり、物質の量つまり高さが分かる。

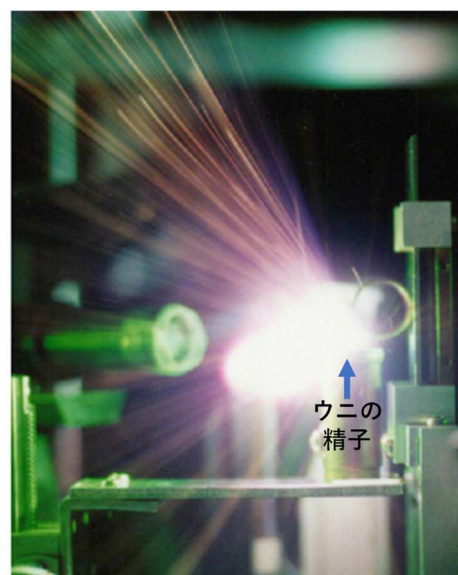


図 11：ウニの精子のある試料支持筒の直上で 500 ps パルスで LPP を作った時の写真。ターゲット平板から多数の微粒子が飛散した。

ウニの精子の X 線像を図 12 に示す。文献 48 に載せた写真には内部構造を反映した 100 nm 程度の構造も見える。左の X 線像で、試料以外の場所は似た様な大きさで凸凹している。この凹凸の大きさが X 線像の分解能を決める。長さ 40 μm の鞭毛の太さ 250 nm の数分の一であり、この照射条件での分解能は 50 nm 以下である。この凹凸は照射 X 線量が十分でない時に生じる、光子数密度の不均一、つまりショットノイズ、に依るものである。分解

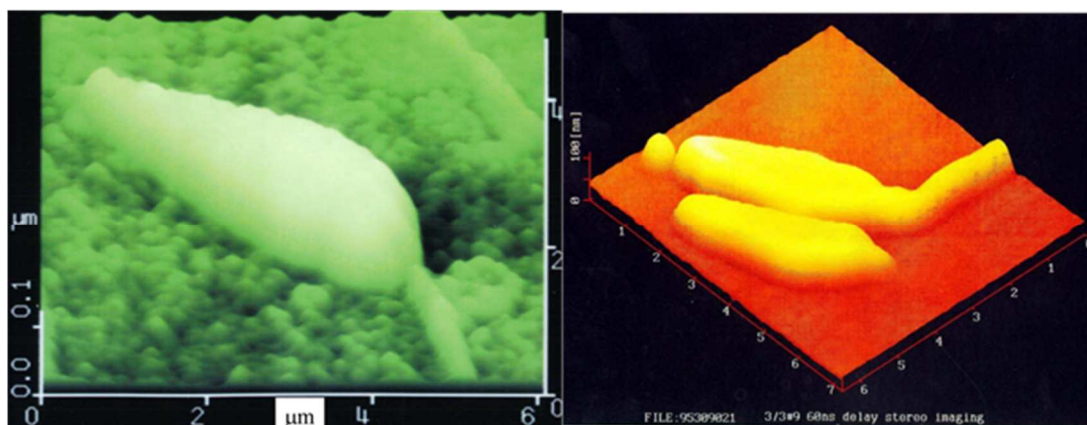


図 12：（左）直前まで活動していたウニの精子の X 線像。現像後のレジスト表面形状を AFM で読み出した。分解能はショットノイズで決まる。（右）パルス間隔が 60ns の時のステレオ X 線像。激甚露光のために細い鞭毛は最初の X 線暴露で吹き飛んだ。

能を半分にするには X 線量を 16 倍にする必要があることを (7) 式が教える。

X 線顕微鏡での空間分解能がショットノイズで決まることは Spiller and Feder (文献 49) から学んだ。2000 年頃だったかに Berkeley を訪問したとき Spiller に会えたので、感謝を述べた。彼から学んだショットノイズで位相欠陥検査法が生まれ、半導体の微細化の継続を可能にしていることを、改めて会って、報告・感謝したい。

ショットノイズが EUV レジストの感度も決めることを 5-4-2 で詳述する。

LPP を生物試料に近づけられれば、etendue が大きくなり照射レーザーのエネルギーを小さくできる。パルスエネルギーが 0.5 J の商用の小型 YAG レーザーで X 線像を撮るために図

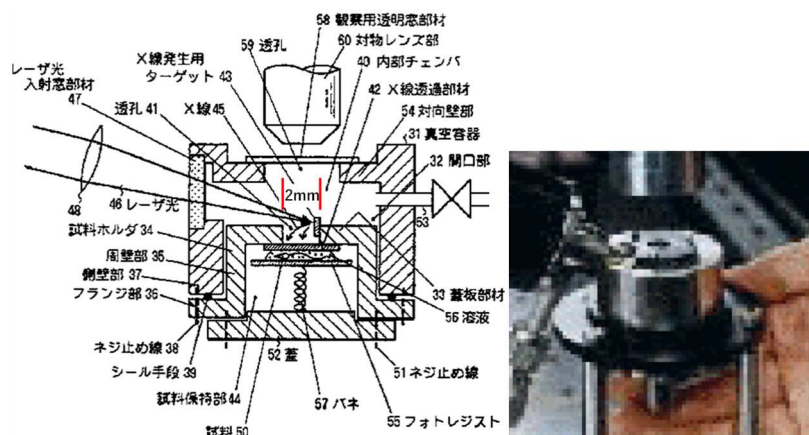


図 13：掌サイズの X 線顕微鏡。生物試料を光学顕微鏡で観察しながら、0.5 J の YAG レーザー照射で高分解能 X 線像が得られる。

13 に示す、掌サイズの小型 X 線顕微鏡を考案した (文献 50)。LPP と生物試料の間隔を 1 mm に小さくしたご利益は大きい。光学顕微鏡が設置でき X 線照射直前まで生物試料の運動が観察できる。水中で生物試料が活動する大気圧環境と LPP を生成する真空環境を分けるために用いた SiN 薄膜は、X 線を透過させるために 100 nm と薄く、50 cm の真空容器に置いたときは真空引きの際の気流でしばしば破損し、X 線像が撮れなかった。小型 X 線顕微鏡では SiN 薄膜の破損がなくなった。X 線顕微鏡用の最適な試料としてウニの精子を提供した清水秀明氏が、小型 X 線顕微鏡での生物試料の観察を彼の主要研究課題にしてくれたのは嬉しかった。

図 11 に多数の筋が見える。LPP 生成で金属板から飛散するデブリである。現像後のレジスト上にデブリを認めることはなかった。生物試料が運動する数 μm 厚さの水が遮蔽したと考える。LPP は高輝度光源であるが、実用化にはデブリ対策が必須である。EUPS では、工夫により、一週間の連続運転が可能である。

5-2-2. 空間分解能の 4 乗に反比例して増える露光量で生物試料が瞬間蒸発

図 12 の右図は、ステレオ X 線像 (文献 38) であり、数十 nm 空間分解能に必要な X 線暴露量が如何に莫大であるかを可視化する。試料とレジストを離し、2 つのレーザービームで生成した二つの LPP からの X 線を 2 方向から照射するステレオ配置で、X 線像の間隔から高さ情報が得られる。2 つの X 線源に時間差を設けると莫大な量の X 線暴露による生物試料の膨張が観察できる。図 12 の右図で、第 1 パルスの 60 ns 後の第 2 パルスの X 線像に、

精子の太い本体は写っているが細い鞭毛はない。最初の X 線パルス照射で蒸発した。短パルスの X 線露光が必須であることを可視化した唯一の X 線像だろう。

5-3. レーザー核融合と X 線レーザーと CCD カメラ

2-4-3 で説明した様に、CCD カメラの読み出し速度が、限られた検査時間に収めるための画素サイズの下限を決め、大きくせざるを得ない画素サイズと光源輝度で検出可能な欠陥サイズが決まる。欠陥検査での最重要パラメーターである CCD カメラの画素情報の読み出し速度と雑音電気信号の大きさを熟知するに至った研究を紹介する。

5-3-1. X 線フィルムの CCD カメラへの置き換え

米国 Lawrence Livermore 国立研究所の実験で、2022 年 12 月 5 日に、投入エネルギー 2 Mega Joule を上回る核融合エネルギー 3.15 Mega Joule が発生できた、とのニュースが世界を駆け巡った(文献 51)。

1972 年に Nature に掲載された、LPP の衝撃波で DT(D:重水素と T:三重水素の分子)を充填した殻を圧縮して液体密度の 1000 倍に圧縮した後に、イオン温度を 10 keV に加熱して核融合反応を点火させる慣性閉じ込め核融合(レーザー核融合とも言う)での“ブレーク・イーブン”(入出力エネルギーが等しくなること)が、僅か 1 kJ のレーザーで可能という計算を示した Nuckolls らの論文(文献 52)は世界に衝撃を与えた。1973 年の第一次オイルショックを受けて、電総研でも、後に電総研所長、工業技術院(工技院)院長になる極限技術部高温技術研究室長杉浦賢氏と電波電子部レーザー研究室長柏木寛氏と、後に次長になる基礎部電子物理研究室長前川稠氏の三人がレーザー核融合用の大出力レーザー開発の共同研究を始めた。数年間、大体毎年三研究室にそれぞれ一人の研究員が配属された。その一人が筆者である。

レーザー電場で振動する電子がレーザー光を吸収して電子温度が高くなり、数 ps でイオン温度が上がり(文献 53)、極高圧力、 $p = \rho_i v_i^2 / 3$ 、が発生する。ここで、 ρ_i はイオン密度、 v_i はイオンの速度である。この圧力で DT を充填した殻を押して圧縮しようというのがレーザー核融合である。吸収されたエネルギー、 $E = M_i v_i^2 / 2$ 、(M_i : 体積 V 中のイオン質量)を使うと $p = 2E/3V$ になり、大きな圧力を発生するにはなるべく小さな体積 V にエネルギーを注入する必要がある。イオンが膨張を始める前にエネルギー注入するために、ps から ns の短パルスを使う。

超高密度で超高温の状態が作られることは短パルスレーザー生成プラズマが高輝度 X 線源である理由であるが、X 線を効率良く放射するには、多価イオンが必要である。イオン化の速度で律速されて多価イオンの発生にナノ秒程度の時間がかかる。10 ns 以上ではイオンが膨張して低密度化して X 線強度が低くなり、1 ns 以下ではイオン化が十分に進まずやはり X 線強度が低い。X 線源の最適なパルス幅は 1~10 ns である。

レーザー核融合の実験では、発生した高圧力を評価するために密度と温度とこれらの空間分布を観測する必要がある。これらの情報は X 線スペクトルから得られる。LPP の実験では X 線の観測が最も重要である。

大出力硝子レーザーシステムは、熱伝導率の小さい大口径のレーザー硝子が冷えるのを待つために、ショット間隔は 30 分以上にせねばならず一日に数ショットしか打てない。1 ショットの照射で種々の情報を得るために、プラズマを取り囲んで多くの検出器を配置する。1990 年代前半までは X 線スペクトルを X 線フィルムに記録したが、1. 遮光が必要、2. 真空チェンバーを開けてフィルム取り出して暗室に一人で 30 分ほど籠って現像する、3. マイクロデンシトメーターで臭化銀粒子の黒化度を読み取るなど、かなり不便であった。1985 年から販売が始まった民生用 CCD カメラを使えばこれらの問題が解決されると思いついた。特にソニーの CCD カメラは、他社製品に比べてコンパクトで真空容器内で LPP に近接して設置でき、性能も良かった。

5-3-2. CCD カメラと菊池誠

Si で形成された画素中に X 線照射で作られる電子・正孔対の信号を読み取るが、民生用 CCD カメラには保護用のガラス板があって X 線が遮断される。X 線に感度を持たせるにはガラス板を外さなければならない。CCD 素子に傷をつけずに保護ガラス板を外すのは難しかった。

ソニーの営業に電話して、保護ガラスをつける前の CCD 素子を売ってくれるようお願いしたが、製造ラインの途中で取り出すことはできない、と二べもなく断られた。

ソニー中央研究所の所長、菊池誠氏が電総研の先輩であることを思い出し、電話番号を調べ、電話した。直接電話口に出られたので、理由を説明し、保護ガラス窓を付ける前の CCD 素子をラインの途中で取り出して売ってくれるよう、工場に働きかけて欲しい、と頼んだ。快く承知してくれた。

菊池氏の鶴の一声で、営業を通して、ガラス窓無しのソニー製 CCD 素子が 20~30 個購入でき、研究室の強力な武器になった。

産総研になってから菊池氏が講演される機会があり、講演後に 20 年ほど前のお礼を述べた。当然、そのことを全く記憶されてなかった。

必死だったとは言え、ソニーという大会社の中研所長という大幹部に、よくも厚かましくも電話したものだとは振り返るとともに、面識のない後輩若造の要望を快諾して頂いた菊池氏に、改めて感謝、敬服する次第である。

5-3-3. EUV に感度を持つ背面照射型 CCD カメラの登場

Livermore 研究所の研究で、ブレークイーブンには MJ のパルスエネルギーが必要ということが 1980 年代には明らかになり、電総研で核融合を目指すのは無理になった。

電総研採用時に筆者に与えられた課題であるレーザー核融合用大出力レーザーの開発に関しては、安定な発振動作を可能にする強制モード同期を連続発振ができない硝子レーザー発振器で実現できた（文献 54）。今後は硝子レーザー発振器が研究されることがないだろうから、史上唯一の強制モード同期硝子レーザー発振器と言える。研究の過程で思いがけず、共振器内パルス短縮現象を発見し、それが非線形屈折率で生じる SPM（self-phase-modulation、自己位相変調）による現象だったことを明らかにした（文献 55）。これは、数

年後に登場した Ti:sapphire 結晶での、フェムト秒レーザーパルスの発生原理である。レーザー分野の主要雑誌ではない JJAP の筆者の論文は周知されておらず、一般には 10 年後に書かれた論文が命名したカーレンズ効果とされる。レーザー硝子は大口径化が容易な利点があるが、熱伝導率が極めて低いために連続発振ができない。熱伝導率が高いレーザー結晶 Ti:sapphire の登場で、フェムト秒パルスの数十 MHz の連続発振が可能になった。今、一般科学だけでなく医療・工業分野でも広く活躍している。尚、Ti:sapphire 結晶の熱伝導率はレーザー硝子より遥かに大きい、Ti:S レーザーの高パワー化は熱レンズ効果で制限される。将来も、筆者らが達成した 10 kHz 54 W (文献 56) を越えることはないだろう。

硝子レーザー発振器の研究が一段落したあと、大出力レーザーで生成する LPP をレーザー媒質とする X 線レーザーの研究に移り (文献 57、58)、それが EUPS に繋がった。X 線レーザーの実験では EUV の観測が必要になる (文献 59)。

通常の CCD カメラは、入射面に信号読みだしのための電子回路が描かれていて感光面の一部が遮蔽されている。また、保護用の厚い酸化膜で被覆されているので EUV 光には感度がない。ソニーからカバー硝子のない CCD 素子が購入できるようになっても、X 線レーザー研究で観測する必要があった EUV スペクトルを、Kodak 101-07 と呼ばれる X 線フィルムに記録した (文献 60)。2000 年になると、電極面の逆の背面の酸化膜を薄くして EUV 光を入射する背面照射型 CCD 素子が発売された。EUVL 用の LPP 光源の研究では、背面照射型 CCD 素子を用いて EUV スペクトル計測を行った (文献 33、34)。

背面照射型 CCD 素子では熱雑音が多いが、ペルチエ素子で -40°C に冷却して熱雑音を低減する。電気雑音は読み出し電気回路にも大きく依存する。低雑音で高速に電気信号を読み出す回路が製作できるという個人会社が見つかり、LPP 研究用の回路を特注した。マスク基板の欠陥検査法での最重要パラメーターである CCD カメラの読み出し速度と読み出し雑音は、筆者には大きな関心事だった。

(本稿で用いる技術用語⑤)

核融合発電：恒星の中心では重水素と重水素が核融合する D-D 反応が起きているが、重水素と三重水素の D-T 反応、 $D+T \Rightarrow He + n(14MeV)$ 、(n は中性子。14MeV は得られるエネルギー) は反応温度が低く水素爆弾に利用され、核融合発電研究でも D-T 反応が用いられる。放射能廃棄物を作らない CO₂ を発生しないクリーンな発電で、燃料が海水から取り出して無尽蔵であるとされ、夢の発電と言われる。イオン温度が 10 keV 以上で、電子密度 n と反応温度の維持時間 τ の積 $n\tau > 10^{14}/cm^3 \text{ sec}$ が核融合反応の条件 (ローソン条件) とされる。強磁場で高温プラズマを秒以上に維持する磁場閉じこめ方式の研究は 1950 年代から行われている。大出力硝子レーザーが開発された 1970 年代から、 n を超高密度にしてブレイクイーブンを実現しようとする慣性核融合の研究が始まった。原子力発電では中性子を ²³⁵U に衝突させる。例えば ⁹⁵Y と ¹³⁹I に核分裂し新たな中性子が放出される。即発中性子の平均運動エネルギーは 2MeV であり、燃料の 96% の ²³⁸U による中性子の吸収を抑えて連鎖反応を行わせるため、水で 0.1eV 以下に減速する。水が減ると即発中性子が減速されず、連鎖反応が止まる。中性子を減速した水の蒸気を使って発電する。

5-4. EUVL は究極のリソグラフィー技術

MIRAI での担当課題ではなかった欠陥検査法を筆者が考案したのは、EUVL 実用化の障

害を解決することを使命と考えていたからである。1990 年代半ばに、EUVL は究極のリソグラフィ技術であり是非とも実用化せねばと考え、古室昌徳氏と一緒にあって EUVL の国家プロジェクト化を目指した。2 年間の先導研究「ハードフォトン(奥村元氏の命名)」は国プロ化には至らなかったものの、その数年後に米国で本格的開発が始まり、筆者は EUVL に深く関わることになった。

本節で、EUVL が究極のリソグラフィ技術であることを説明し、筆者が EUVL 分野に行った提案群を紹介する。

5-4-1. LPP による X 線等倍露光

高エネ研のフォトンファクトリは 1982 年に運用を開始したが、それに先立って、電総研は 1979 年のつくば移転を機に、冨増多喜夫氏が先頭になって放射光施設を建設した。筑波移転を円滑に進めるために杉浦賢氏が、職員の家族にも情報共有するためのサーキュラーを発行したが、移転後は ETL サーキュラーと名を変え、所内の雑情報を掲載した。筆者は工技院出向の石井格氏の後任の編集委員になり、全職員の血液型調査の報告などの多くの記事を書いた。初代委員長が若松清司氏で、二代目委員長が冨増氏だった。

図 1 で説明したように 1970 年代には可視光の等倍露光が行われていたが、光の解像限界を越えるものとして X 線等倍露光に大きな期待がかかった。電総研の放射光施設でも活発に研究され、金山氏や伊藤順司氏の研究が、所内全研究部門の研究トピックスを紹介する ETL ニュースの表紙を飾った。1978 年の縮小露光で $2\text{ }\mu\text{m}$ の壁が突破できたことで、1980 年代半ばには X 線等倍露光の研究は下火になったが、g 線、i 線では $0.5\text{ }\mu\text{m}$ の壁があり、X 線等倍露光の需要は潜在していた。

第 1 章で紹介した様に 1986 年から KrF レーザーによる縮小転写が始まった。これは、1980 年前後に高繰り返しエキシマーレーザーが製品化されたからである。低繰り返しの巨大レーザーではなく、小型の KrF レーザーでの X 線発生が可能になった。筆者は LPP での X 線等倍露光の可能性を探った(文献 61)。EBR-9 レジストで $0.5\text{ }\mu\text{m}$ パターンの転写を行い、LPP での X 線発生の最適化条件(文献 62)を明らかにし、固体ターゲットからのデブリ抑制方法などの研究も行った。結論は、大きな立体角で X 線が捕集できなければ、LPP での X 線等倍露光は実用化できない、であった。

keV-軟 X 線の垂直入射反射鏡がなかったことが、LPP による等倍 X 線露光の展望なしと筆者が結論した理由だったが、今は、譬え keV 軟 X 線用反射鏡が作成可能になっても、レジスト感度の観点から 13.5 nm は最適波長であると考ええる。

5-4-2. 13.5 nm が最適波長

リソグラフィは、マスクのパターンをレジストに転写し、現像して転写パターンを浮き上がらせる技術である。レジストの現像で高空間分解能を得るための条件を図 14 で考える。分解能の大きさのレジスト分子の塊を考える((a))。図 12 左図の凹凸構造に相当する。この分子塊が光子を吸収し、光励起された電子が活性酸素を作る等の過程を経て分子塊の溶解度が変化すれば、現像によりこの分子塊が除去されてマスクの形状が浮かびあがる。

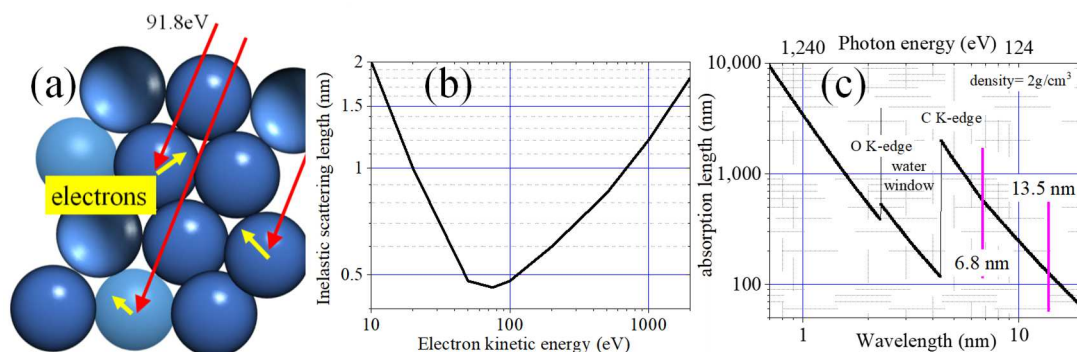


図 14: (a) : 分解能サイズの分子塊が吸収する光子数でレジスト感度を見積もる。(b) : 電子の非弾性散乱長は 2 nm 以下。(c) : 吸収長の波長依存から 13.5 nm が最善のレジスト露光の波長。

光励起の一次電子の非弾性散乱長が分子塊の大きさより小さければ、分子塊の大きさの空間分解能が得られる。5-3-3 で紹介した EUV 用 X 線フィルム Kodak 101-07 の分子塊の大きさは 800 nm だった (文献 60)。(b) に示すように、電子の運動エネルギー 10 eV ~ 2 keV で、非弾性散乱長は 2 nm 以下である (文献 21)。つまり分解能 2 nm でのパターン転写が可能である。ちなみに EUPS では、255 eV 光励起で発生する 50 ~ 100 eV の光電子の脱出深さは、最も浅い 0.5 nm であるので、物質の最表面原子層の情報が得られる (文献 21)。

HP 10 nm 程度であれば、keV 軟 X 線も利用できる。

直径 2 nm の分子塊が光子エネルギー $h\nu$ の 1 個の光子を吸収する時、吸収エネルギーの面密度は $h\nu/(2 \text{ nm})^2$ である。次にレジストの厚さを考慮する。現像後のレジストパターンの幅が 10 nm でアスペクト比を 10 とすると、レジストパターンの高さは 100 nm になり、直径 2 nm の分子塊が 50 個積み重なっている。全ての分子塊が 1 個の光子を吸収するべきなら、吸収エネルギーの面密度は $50 h\nu/(2 \text{ nm})^2$ になる。100 nm の厚さのレジストの吸収率が 10 % ならばレジストの「照射」感度は $10 \times 50 h\nu/(2 \text{ nm})^2$ になる。

最後に、レジスト感度の露光波長依存を考える。レジストの大半は炭素から構成されている。比重 2 g/cm³ の架空の材料 C₆O の吸収長を図 14 (c) に示す。1 keV 軟 X 線は数 μm も透過し、厚さ 100 nm のレジストの吸収率は数 % と小さく、レジスト感度は低い。keV 軟 X 線では HP 300 nm 迄は対応可能であるものの、譬え垂直入射鏡が製作可能であっても、レジスト感度の観点から、HP 50 nm 以下への対応は困難ということになる。13.5 nm では、吸収長が 100 nm 程度で、厚さ 100 nm で 60 % 程度も吸収され、HP 10 nm で 2 nm の線幅粗さ (LWR: line width roughness) も可能である。

分かりやすくするためにレジストの厚さを持ち出して説明したが、感度はアスペクト比とは関係なく、分子塊の大きさと吸収係数で決まる。

6.8 nm への短波長化も議論されるが、レジスト感度が 1/5 に小さくなる。5-4-6 で述べる様に EUV 光源パワーは現状で上限に近く、13.5 nm 以下への短波長化の可能性は低い。長波長化すればレジスト感度は上がるが、多層膜中の吸収も大きくなり有効な層数が減って反射率が小さくなる。高スループットのための大きな etendue のために 10 枚以上の多層膜

反射鏡が必要なので、僅かの反射率低下でもレジストに届くパワーの減少は大きい。長波長化も難しい。

5-4-3. ショットノイズがレジスト感度を決める

実際のレジストでは、HP 14 nm で、LWR 4 nm で感度 20 mJ/cm² 程度、LWR 2 nm で感度 80 mJ/cm² 程度が報告されている（文献 63）。照射エネルギー密度 80 mJ/cm² は 13.5 nm の光子数の面密度に換算すると 218 photons/(2 nm)² になる。アスペクト比 10 とすると厚さが 140 nm (分子塊 70 個) になり、13.5 nm での吸収率は 75% で (2 nm)² の面積で 163 光子が吸収される。分子塊 1 個あたり 2 個の 13.5 nm 光子を吸収した計算になり、尤もらしい。Kodak 101-07 では、光子エネルギー 70~300 eV の光子一個の吸収で直径 800 nm の臭化銀粒子が黒化した（文献 60）ので、1 個の 13.5 nm 光子の吸収で可溶解になる EUV レジスト分子塊が設計できるかもしれない。細長い分子塊を縦方向に配列したり、電界または磁界で二次電子の拡散に異方性を持たせたりができるなら、高感度化できるかも知れない。

2000 年当時、EUV パワーの低さを補うため感度が数 mJ/cm² の増感レジストを開発しようという熱い議論があった。ショットノイズで感度の限界があると筆者が説いても理解されなかったが、2005 年になってショットノイズを議論する論文が現れた（文献 64）。

5-2 の X 線顕微鏡の節で説明した水の窓、C K 吸収端 (4.36 nm) と O K 吸収端 (2.28 nm) の間、の波長域でのレジストによる吸収長は 100~500 nm であり、100 nm 径の鞭毛の高分解能 X 線像の撮影が可能である。

5-4-4. 色収差がない反射光学系で広帯域スペクトルの利用

160 nm 以下では長寿命のレンズ材料が存在しないために EUVL では反射鏡で像転送が行われるが、光源の有効利用の観点からは反射光学系が良い。5-1-2 で述べた様に、光源輝度は黒体輻射輝度などの限界があり、光量を大きくするには etendue、帯域幅、duty 比を大きくすることになる。屈折率が波長依存をするためレンズの焦点距離が波長により異なり、色収差補正のためのレンズ設計は複雑である。反射鏡の焦点距離は波長依存をしないので、広い帯域幅が利用できて高パワー照射ができる。

5-4-5. 13.5nm 光源の最適元素は錫

水の窓 X 線の最適材料を探索した筆者らの実験結果を図 15 に示す（文献 62）。この図から EUVL の 13.5 nm-EUV 光源には原子番号 50 の Sn が適することが分かる。

X 線スペクトルはバンド構造を持っており、図 15 (a) に見る様に、ピーク位置は元素の原子番号 Z と Moseley の法則

$$h\nu = A(Z-b)^2 \quad \text{-----} \quad (8)$$

と呼ばれる経験則に従った。

三つの元素について、X 線スペクトルを図 15 (b) に示す。Cl は L 殻電子の励起の発光、Y は M 殻、Ta は N 殻の X 線である。必要とする波長領域の積分強度の全 X 線スペクトル強度に対する割合を、筆者はスペクトル効率と定義した（文献 15）。Y のスペクトル効率は Ta のその 2 倍程度であった。Cl はバンド幅が狭い。図 15 (c) に見る様に、三元素とも、

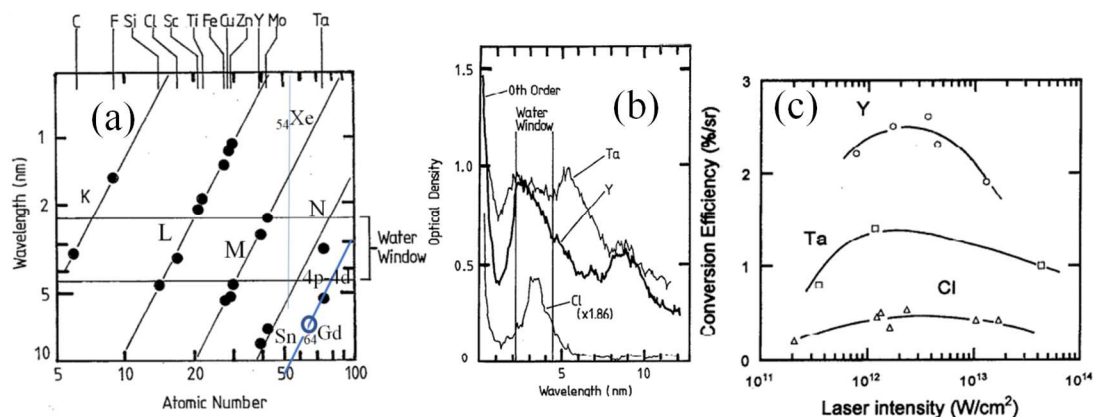


図 15: 「水の窓」LPP 用材料の探索 (文献 35)。(a): 波長と原子番号は Moseley の法則に従った。13.5 nm には Sn が適する。(b): 原子番号が大きいとスペクトル幅が広い。(c): 「水の窓」X 線への変換効率がピークになるレーザー強度は 3 元素で同じ。

同じレーザー照射強度で効率がピークになったが、スペクトル幅が Cl より広くスペクトル効率が Ta より高い Y の変換効率が最も高かった。

Ta では、広い 3 nm バンドの長波長側に、狭い 5 nm バンドがある。これを低原子番号に延長すると、原子番号 50 の Sn で 10 nm を越える。この結果から、13.5 nm 光源の元素には錫 ($_{50}\text{Sn}$) が適することが分かる。K、L、M、N で示した発光はそれぞれ L、M、N、O 殻からの遷移であるが、Ta の 5 nm バンドは $4d \Rightarrow 4p$ 遷移である。バンド幅が狭いのは殻内遷移だからである。多層膜の反射スペクトル以外の波長は利用できないので、利用可能な EUV 光への変換効率を高くするため、つまり LPP を生成するためのエネルギーを小さくするには、スペクトル幅は広すぎない方が良く、殻間遷移より、 $4d \Rightarrow 4p$ の殻内遷移が良く、13.5 nm 光源の元素には、 $_{50}\text{Sn}$ が適している。

Livermore 研究所で EUVL 用 LPP の最適材料の探索研究が行われた。固体ターゲット上に生成した LPP から発生する大量のデブリが回避不可能な障害と結論された。中でも錫は最悪材料とされた。1990 年の Bell 研の 50 nm パターン転写 (文献 25) で盛り上がった期待は萎んだ。

しかし、1996 年に、米国 Sandia 国立研究所の Kubiak が、希ガス Xe の氷をターゲットとすることで LPP からのデブリ問題が解決できることを示して、EUVL の本格的な開発が始まった (文献 15)。原子番号 54 の Xe のピーク波長は、Mo/Si の反射スペクトルの裾の 11 nm であり 13.5 nm での変換効率は低いが、デブリ問題の解決が最重要事項であり、LPP の元素は Xe で決定、が当時の EUVL 関係者のコンセンサスだった。

しかし、筆者は、Sn をこそ使うべきだと主張した。国際会議で Sn の採用を主張したのは筆者だけだった (文献 15、35、65)。筆者の主張の理由は、EUV 光捕集鏡の多層膜の高速イオンによるスパッター問題はプラズマ材料の付着以上の深刻な問題であることと、プラズマ空間の除熱が深刻だったからである。プラズマ空間への投入エネルギーを減らすべきであり、高変換効率はそのために求められる。2002 年の Dallas での国際会議で、Xe-DPP

開発を行っていた Xtreme 社と Phillips 社は材料を Xe から Sn に変えると宣言した(文献 15)。国際会議で筆者は、当時主流であった DPP ではなく LPP にすべきだとも主張した。放電のために電極間隔を広げることに制限があり、1. EUV 光を大きな立体角で捕集できないだろう、2. 汚染対策が容易でないだろう、3. プラズマエネルギーから EUV への変換効率が高くできずプラズマ空間への投入エネルギーが大きくて除熱が困難だろう、と考えた。

1990 年の Bell 研の 50 nm パターン転写で盛り上がった期待が萎んだのは、Sn 等の金属ターゲットのデブリ問題が深刻だと考えられたからである。しかし、筆者の考察で、光源室の汚染は深刻でプラズマ生成に必要な最小限の物質しか供給してはならないことが分かっていた(文献 35、65)。デブリが発生するターゲット構造こそが問題でありデブリは元素選択の考慮項目ではない。必要最小限質量のターゲット供給法について 5-4-7 で説明する。

Xtreme と Phillips はプラズマの材料を Sn に変えたが、その後 Ushio に事業を売却した。2012 年には ASML が Cymer の Sn-LPP を採用することを決めたため、Ushio も 2012 年に EUVL 用の露光光源事業から撤退した。筆者の主張通りに推移した。

LPP からの高速イオンによるスパッターは、多層膜鏡に付着した Sn イオンが保護膜の役割を果たすことで解決された。大学との共同研究で Cymer は、付着とスパッターが平衡する条件を見出した。捕集鏡の多層膜のイオンスパッター問題は、付着しない Xe では解決不能だった。ASML は Cymer を吸収した。

5-4-6. EUV 光源パワーは限界に近い

図 10 で、観測された LPP の輝度、B、Fe、Mg、Y は全て 200 eV 黒体輻射程度の輝度であった。黒体輻射輝度、4.3 GW/cm² 程度を越えるパワーは得られないことを 2001 年の第 3 回 EUVL 国際ワークショップで説明した(文献 15、66)。光源 supplier 各社は驚いた。

直径 500 μm で発光持続時間が 8 ns の LPP が 10 kHz で生成できるなら、反射率 50 % で捕集立体角 πsr の捕集鏡で捕集すると、透過率 80 % の薄膜を通した中間集光点での EUV パワーは 130 W になる(文献 15、35)。

2011 年時点で、Cymer の LPP は、プラズマ径 150 μm 、レーザーパルス幅 15 ns、繰り返し 40 kHz、捕集鏡の捕集立体角が 5 sr であった。筆者の計算では 140 W が得られる計算だが、彼らは 160 W を得たと発表した(文献 15)。ASML が 2018 年に出荷した露光装置 NXE:3400B の EUV パワーは 150 W だった。2011 年時点と大差はない。

ASML は、2018 年に 250 W を達成し、2022 年に 500 W を達成したと報告した(文献 65)。上限に近い液滴生成の繰り返し率を 50 kHz にした様であるが、パルス幅を長くするにはプラズマ径を大きくすることになる。500 W を得たならプラズマ径(レーザーの集光径)を 2 倍程度に大きくしたのだろうが、プラズマ径を大きくするのは容易ではなく、驚異的な数字である。LPP の径を大きくする困難さを次節で説明する。2021 年から出荷の NXE:3600 シリーズの光源パワーは 300W になっているだろうか？

5-4-7. 微粒子クラスターで高繰り返し LPP

プラズマが大きくなってイオンの数が増えれば発光強度が比例して増える筈なのに、強

度が黒体輻射輝度以上にならないのは、内部のイオンが放射する光が表面のイオンに吸収されるからである。プラズマに閉じ込められた光エネルギーはイオンの運動エネルギーに変わる。電子に注入したエネルギーが発光にではなくイオンの運動エネルギーに流れて、発光効率が低くなる。内部のイオンからの輻射が表面から脱出できる度合いは *opacity*（不透明度）と呼ばれ、発光効率を高くするには、*opacity*、 τ を小さくする。強度と効率の両方を考慮すると $\tau \sim 0.3$ 、つまり、黒体輻射輝度、 P_{BB} 、の 3 割の輝度になるプラズマの直径 $\times$ 密度が最適である（文献 15）。

LPP に注入したエネルギーの多くは、多価イオンを作るためのイオン化エネルギーに消費されるので、変換効率の最大化には、一つのイオンには長時間発光してもらわねばならない。プラズマ径 d を大きくして、イオンが動き出すまでの時間を長くして一つのイオンの発光時間を長くして変換効率を大きくするために、筆者は、微粒子を広い空間に散布するターゲットを考案した（文献 21、68）。着想の正しさは実験で確認した（文献 34）。

上限が P_{BB} であるので、EUV パワーを大きくするには、LPP の表面積を大きくして繰り返し率を高くすることになるが、繰り返し率には上限がある。

図 16 は、ノズルを振動させて噴出させた酸化錫懸濁液ジェットの写真である（文献 35）。

左の写真では、液滴に分裂する前の上部箇所をレーザー照射した。上下のジェット部分がプラズマの膨張圧力を受けて吹き飛ばされている。同図右の写真は 8 kHz で作った液滴を、弱レーザー励起した水の膨張を見た。繰り返し率を高くするためには液滴間隔を小さくすることになる。プラズマの膨張圧力は次のターゲットの接近を妨げ、二つのプラズマの間隔が制限されて大口径プラズマの繰り返し率が制限される。

繰り返し率を最大化するためのプラズマの間隔を最小化するターゲット構造として、筆者は、図 17 に示す微粒子クラスター・ターゲットを考案した（文献 15、

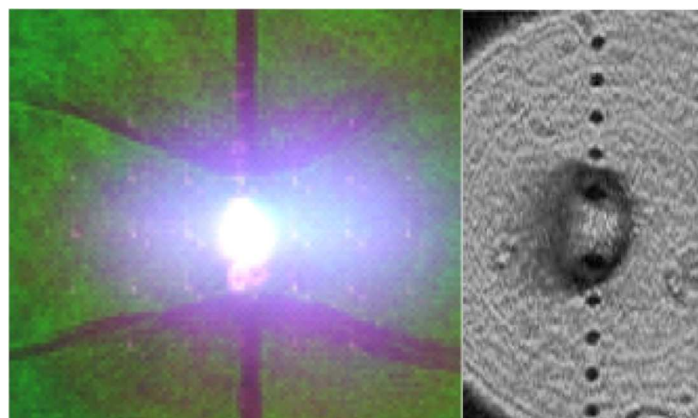


図 16：(左)プラズマの膨張圧力が次のターゲットの接近を妨げる。(右) 8kHz での液滴生成

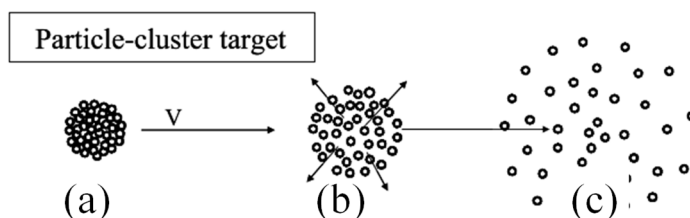


図 17：考案した微粒子クラスター・ターゲット。(a)前のショットのプラズマの膨張圧力が小さくなるように微粒子を小さなクラスターにして移送し、(b)直前に微粒子を広い領域に分散させて、(c)大強度のための大きな径のプラズマを作る。

35、68)。前のプラズマから受ける圧力を小さくして減速を小さくするため、(a) 微粒子群を弱結合で一つの小さな粒子（クラスター）にして搬送する。(b) プラズマを作る直前に、プレパルスの照射などでクラスターを分解し、(c) 広い空間に均一に微粒子を分散させたのちに、主レーザーの照射で大きなエタンドュのための大きな径の LPP を作る。

Cymer の LPP ではプレパルスが使用されていることは分かっているが、それ以上の詳細は承知していない。微粒子クラスタ・ターゲット様になっているかも知れない。

6. 世界情勢と為せば成る者との出会いと稀有な幸運に導く最大限の努力

考案した欠陥検査法が産業界で活躍するに至った要因を考える。

レーザー核融合用として開発した大出力レーザーの応用として取り組んだ X 線レーザー研究では、極薄膜ターゲットをピコ秒レーザー照射する“爆発型”と名付けた新方式を考案し、10.4 nm での利得を観測し 3.34 nm X 線レーザーの展望を示した（文献 69）。1986 年に留学した英国ラザフォード・アップルトン研究所での国際共同研究チームで、炭素ファイバーと Li コートした炭素ファイバーで 18.6 nm（文献 57）と 8.1 nm（文献 58）で X 線レーザー利得を観測した。どれも誇れる成果ではあるが、巨大レーザーを必要とし産業応用の展望は見いだせなかったもので、X 線レーザーの応用として考案した EUPS の研究に移り、それがライフワークになった。

小型レーザー生成 LPP を光源とする誰もが容易に操作できる分析装置として完成させた。EUPS は現在も稼働中で、多くの企業研究者の試料の分析を行ってきた。化学反応速度を決める励起電子のエネルギー緩和速度を定性的に測定する過渡的電子親和力の評価（文献 70）など、他の分析法ではできない新たな分析法を生み出した。EUPS の普及は表面分析と材料開発に於いて革命を起こすと信じる。しかし残念ながら製品化には至っていない。

レントゲンに依る X 線の発見から丁度 100 年目に屈折現象を利用した初めての X 線光学素子である X 線レンズ（文献 71）を考案した。一定の需要はあると考えるが製品化されていない。高い熱伝導率の Ti:S レーザー結晶の出現を知ったとしても、その数年前に硝子レーザー発振器の開発中に発見した SPM で極短パルスが発生する原理（文献 55）を適用して、Ti:S フェムト秒レーザーを開発することはなかっただろう。

筆者のこれらの研究と事業化された産総研方式欠陥検査装置との違いは、必要とする“世界情勢”と、事業化を目指す“場”への参加と、事業化を使命と考える者との出会いだった。

ニコン、キャノンが撤退する中でも巨額の投資を続けて技術を完成し、各社が半導体の量産技術に導入するまでに ASML が育てた“世界情勢”が、産総研方式を必須にした。これが一研究者の考案が巨大産業に貢献できている最大の要因である。材料開発で革命を起こすと信じる筆者のライフワーク EUPS にも、“世界情勢”が形成されることを願う。

MIRAI および EIDEC プロジェクトと言う、日本の半導体産業の復活を狙って、多くの産業化技術創成を強く希求した開発の“場”がなければ、産総研方式の位相欠陥検査法の事業

化はなかった。

原理実証段階から 2015 年度に EIDEC プロジェクトが終わってレーザーテックに事業化を任せるまで、長きに亘って開発を続けた寺澤恒夫氏と出会えたことも必須の要因であった。「為さねばならないこと」として取り組んだ寺澤氏だからこそ、事業化に進むに欠かせない協力企業であるレーザーテックと HOYA を引きこめただろう。

寺澤氏らの仕事を高く評価し支援してくれた、廣瀬全孝氏、渡辺久恒氏、EIDEC プロジェクトを提案してくれた金山敏彦氏、そのほか筆者が会ったことがない多くの人の評価と支援がなければ、製品化に至らなかっただろう。

最初の開発の“場”である MIRAI に筆者が参加するには実績が必要だった。廣瀬プロジェクトリーダーが気に入った科振費に依る顕微 EUPS の成果がなければ、筆者は MIRAI に参加しておらず、産総研方式を提案することはなかった。

木村錫一極限技術部長の促しがなければ EUPS を着想しなかったし、ニコンの近藤洋行氏がいなければ EUPS は立ち上がらなかった。X 線顕微鏡の研究をやっていなければ近藤氏に出会うことがなかった。X 線顕微鏡を自身の研究課題としてくれた清水秀明氏の支援がなければ EUPS の進展はなく、科振費に採択されることはなく、顕微分光のデータを出すことはなく、MIRAI に参加することはなかった。X 線レーザー研究をやっていなければ、その最有望応用としての EUPS を着想することはなかった。大出力レーザーがなかったなら、X 線レーザーの実験は始められなかった。

SORTEC を見学してなかったら、ニコンの X 線縮小リソグラフィー（現 EUVL）研究を知ることはなく、先導研究「ハードフォトン」を提案することはなく、EUVL に関わることはなく、致命的技術課題の一つ位相欠陥検査の解消を自らの使命と考えることはなかった。SORTEC を見学したのは電総研から出向していた阿刀田伸史所長に会うためだった。LPP を X 線源とする X 線等倍露光の実験の際に、レジスト EBR-9 を教えてくれたのが阿刀田氏であった。

多くの人的繋がりが筆者を MIRAI という開発の“場”に導いた。

半導体産業と言う巨大産業にわずかながらの貢献ができてるのは、多くの要因が重なった稀有な幸運である。いつ訪れるか分からない幸運を逃さない様に、その時々精一杯の努力を続ける他に、成功の鍵はないように思う。

LPP による X 線等倍露光も、X 線顕微鏡も、研究実施中にも産業化の展望は見なかったが、それらの経験がなければショットノイズの理解が十分ではなく産総研方式の考案はなかった。LPP の輝度を測定することはなく、LPP が EUPS や EUVL の唯一の光源と主張することもなく、微粒子クラスターなどの究極の LPP 光源を追求することもなかった。大袈裟には、EUVL も消えていただろう。

大出力レーザーの研究から EUPS による表面分析に至るまでの研究の流れは、いま振り返れば必然であるが、どれも意図した転向ではなく将来計画できるものでもなかった。どのような研究も、その中で一流の成果を上げていけば、いつか稀有の幸運がめぐって来た

時に、産業に貢献することになるのだろう。

(本稿で用いる技術用語⑥)

電子親和力:電子を物質の外に取り出すエネルギーは電子親和力と呼ばれる。二つの絶縁物を擦り合わせると、電子親和力の小さい物質から電子親和力の大きい物質に電子が移動して、接触帯電が起きる。化学反応は電子の移動で起きる現象であり、電子親和力が制御できれば化学反応が制御できると考える。伝導帯の高いエネルギー位置に光励起された電子（活性電子）は、過渡的に、小さい電子親和力を持つと考えることができ、他の物質に移動しやすい、つまり、高い化学活性を持つ。活性電子のエネルギー緩和速度（伝導帯の底への移動速度）は、その物質の化学活性を決めるといえる。EUPS で過渡的電子親和力を評価することで、触媒活性などを深く理解できると考える。

X線レンズ:鏡は反射を利用し、回折格子やゾーンプレートは回折を利用する光学素子であるが、屈折を利用する光学素子はX線領域に存在せず、X線レンズはX線光学における夢だった。レンズの焦点距離 F は $F=(n-1)/R$ で与えられる。 n はレンズ材料の屈折率で R はレンズの曲率半径である。X線領域では $1-n \sim 10^{-4}$ と小さく、非実用的に小さな曲率半径 R にしないと実用的な短さの焦点距離 F にならない。筆者が考案した中空円筒を多数並べる構造で、実用的な焦点距離のX線レンズになることが欧州の放射光施設 ESRF での実験で実証された。

SPM での極短パルスの発生:レーザー媒質の非線形屈折率により、通過したレーザーパルスは強度比例の位相変調を受ける。位相の時間微分は周波数であり、強度の時間微分がゼロであるピーク近傍の波長は変化せず、ピークの両側では、強度の時間微分が大きくて波長が $\pm$ にシフトする。波長選択素子を通ると、波長がシフトしたピーク両側の強度が小さくなってパルスが少し短くなる。多数回の往復でパルス短縮が進み、最終的にレーザー利得のフーリエ変換極限のパルス幅になる。一般には Ti:sapphire レーザーのフェムト秒発生の原理はカーレンズ効果とされる。非線形屈折率により位相変調がビーム中心で大きく裾で小さくなって波面の「空間」変調が生じると、X線レンズの原理同様、レンズ効果が生じる。パルス圧縮は位相変調の「時間」微分と「波長選択」で起きる現象であり、レンズ効果とは無関係である。

7. まとめ

日米欧で 20 年に亘って開発が行われたリソグラフィEUVL が当初予定より 10 年ほど遅れたが、遂に 2019 年から、半導体の量産技術として稼働を始めた。露光装置は蘭の ASML の独占であるが、多くの日本企業が活躍している。中でも Lasertech 社はマスク基板の欠陥装置では 100% のシェアである。2000 年当時、EUVL の show stopper の一つとされた位相欠陥検査法の課題を、筆者が考案した産総研方式が解決した。凹面鏡と凸面鏡からなるシュバルツシルト光学系の配置で、多層膜から成るマスク基板の位相欠陥からの散乱光のみを結像して、Berkeley での研究の 3 桁以上の高速の検査速度で、欠陥を見逃すことなく且つ偽欠陥信号のない検査を可能にした。製品化技術を寺澤恒男氏らが半導体 MIRAI と EIDEC プロジェクトで確立し、Lasertech 社が事業化した。

高速な欠陥検査を可能にする産総研方式の特徴は、1. CCD カメラの読み出し速度が決める大きな画素サイズの設定、2. ショットノイズ計算が教える必要照射量を最小化するための大きな遮蔽 NA での暗視野結像、3. 検査速度の高速化のための etendue の大きいプラズマ光源での広い領域の照明である。これらの知見は筆者の産総研時代の研究で蓄積されており、必然的に導かれた方式であった。

欠陥検査問題の解決を筆者の使命にしていたのは、EUVL を究極のリソグラフィと考える EUVL に深く関わっていたからである。EUVL の究極性と EUVL 分野への筆者の提案群を 5-4 で説明した。

基礎研究と事業化の間の深くて広い谷を位相欠陥検査法が飛び越えられた鍵は、ASML が先頭に立って育ててくれたその技術を必須とする世界情勢に加えて、日本の半導体産業の復活を目指した廣瀬氏が率いた半導体 MIRAI プロジェクトに参加できたことと、検査装置を事業化するという強い信念を持った寺澤氏に出会えたことだった。その鍵を手に入れるまでに多くの人との出会いがあった。各時点での最大限の努力が導いて呉れた幸運であった。産総研方式を事業化に結び付けてくれた無数の人々の多大な努力に深く感謝する

第 4 章で紹介した様に、鳳紘一郎氏を通して、EUVL は、電気試験所考案のステップ・アンド・リピートに基づいて誕生したステッパー方式露光装置と繋がりがあった。1990 年代末の誕生のその 15 年程前に鳳氏が結んでくれた赤い糸で筆者が繋がっていたことを半年前に知った。この EUVL が、遂に、半導体の量産技術として稼働を始めたことは感慨深い。一層大きく活躍することを願う。

謝辞

金山敏彦産業技術総合研究所特別顧問から多くのコメントを頂いた。感謝します。

参考文献

- 1)
“「24 年末に EUV 装置」「量産までに 5 兆円」国産半導体製造会社が発足”,
日経クロステック 2022.11.11.
<https://xtech.nikkei.com/atcl/nxt/column/18/01537/00559/>.
- 2)
“TSMC が 12 月 29 日に台南 Fab 18 で 3nm の量産開始式典を開催予定、台湾メディア報道”,
Tech 2022.12.27.
<https://news.mynavi.jp/techplus/article/20221227-2548114/>.
- 3)
TSMC, “TSMC’s N7+ Technology is First EUV Process Delivering Customer Products to Market in High Volume”
2019/10/7
https://pr.tsmc.com/system/files/newspdf/THHHIPGTH/NEWS_FILE_EN.pdf.
- 4)
“Samsung Electronics Starts Production of EUV-based 7nm LPP Process”
Samsung Newsroom, Nov 01, 2018
<https://semiconductor.samsung.com/newsroom/news/samsung-electronics-starts-production-of-euv-based-7nm-lpp-process/>

“Samsung Introduces the Industry’s First 5nm Processor Powering the Next Generation of Wearables”
Samsung Newsroom, Aug 10, 2021
<https://semiconductor.samsung.com/newsroom/news/samsung-introduces-the-industrys-first-5nm-processor-powering-the-next-generation-of-wearables/>
- 5)
J. R. Wilson, “Intel 4 Process Is Production-Ready, Pushing Towards 18A In 2024 With First Test Chips Already Produced”
WCCFTECH Feb 24, 2023,
<https://wccfttech.com/intel-4-process-is-production-ready-pushing-towards-18a-in-2024-with-first-test-chips-already-produced/>
- 6)

T. Tomie, T. Terasawa, Y. Tezuka, and M. Ito, “Concept of ultra-fast at-wavelength inspection of defects on a multilayer mask using a laser-produced plasma source”,

Proc. SPIE **5038** (2003) 41,

富江敏尚、特許第 3728495 号、多層膜マスク欠陥検査方法及び装置、出願日 2001.10.5,

T. Tomie: U.S. Patent 6,954,266 (2005) “Method and Apparatus for inspecting Multilayer Masks for Defects”.

7)

半導体の市場規模の推移

Historical Billings Report, 36 Years WSTS Blue Book Data

World Semiconductor Trade Statistics

<https://www.wsts.org/67/Historical-Billings-Report>.

8)

Transistor count. (2022, December 6). In Wikipedia.

https://en.wikipedia.org/wiki/Transistor_count.

9)

“A15 Bionic チップの性能を解説 | ベンチマークや A14 Bionic との比較も”

bitWave 2022/3/9

<https://bitwave.showcase-tv.com/a15-bionic/>.

10)

“スパコン世界 4 冠の「富岳」、そのすごさを丸っと解説！”

日刊工業新聞社 2020 年 06 月 25 日,

<https://newsswitch.jp/p/22744>.

11)

労働安全衛生総合研究所 “ウェアラブル深部体温計の実用化に向けて”、

安衛研ニュース No. 119 (2018-10-05)、

https://www.jniosh.johas.go.jp/publication/mail_mag/2018/119-column-1.html

12)

Trends in DRAM price per gigabyte ,

AI Impacts.

<https://aiimpacts.org/trends-in-dram-price-per-gigabyte/>.

13)

福田昭 “「SEMICON West 2016」、半導体露光技術の進化を振り返る（前編）”,

EE Times 2016 年 08 月 9 日.

<https://eetimes.itmedia.co.jp/ee/articles/1608/09/news028.html>

14)

半導体技術ロードマップ専門委員会 - JEITA 半導体部会

<https://semicon.jeita.or.jp/STRJ/STRJ/>.

International Roadmap for Devices and Systems (IRDS™)

<https://irds.ieee.org/editions>.

15)

Toshihisa Tomie, “Tin laser-produced plasma as the light source for extreme ultraviolet lithography high-volume manufacturing: history, ideal plasma, present status, and prospects”,

J. Micro/Nanolith. MEMS MOEMS **11** (2012) 021109.

16)

[Annual reports | ASML](#)

<https://www.asml.com/en/investors/annual-report>.

p.135 in “ASML-Integrated-Report-based-on-US-GAAP-2017.pdf”,

p.65 in “2019 Integrated Report based on US GAAP.pdf”,

p.187 in “ASML Annual Report US GAAP 2021 unsvf2.pdf”,

p7 in “Presentation Investor Relations Q1 2022.pdf”,

p20 in “ASML Statutory Interim Report 2022.pdf”,

p8 in “2022_10_19_Presentation Investor Relations Q3 2022.pdf”.

17)

“新製品： EUV マスクブランクス欠陥検査/レビュー装置 ABICS 「E120」 を発表”、

レーザーテック株式会社 2017 年 04 月 03 日.
https://www.lasertec.co.jp/news/2017/20170403_2629.html.

18)
レーザーテック株式会社 (6920) 過去データ Investing .com.
<https://jp.investing.com/equities/lasertec-corp-historical-data>

19)
“極端紫外線 (EUV) を利用した次世代のマスクブランクス検査技術を確立”,
NEDO プロジェクト実用化ドキュメント レーザーテック株式会社 取材: August 2018.
<https://www.nedo.go.jp/hyoukabu/articles/201903lt/index.html>.

20)
M. Yi, S. Jeong, S. Rekawa, and J. Bokor, “Characterization of extreme ultraviolet lithography mask defects from extreme ultraviolet far-field scattering patterns,”
J. Vac. Sci. Tech B **18** (2000) 2930.

21)
富江 敏尚, 石塚 知明 “最表面原子層を分析する光電子分光装置 EUPS の開発
—レーザー生成プラズマ光源の実用化技術開発と EUPS が見せる材料最表面の魅力—”
Synthesiology 2016 年 9 巻 4 号 p. 216-234.

特許
第 2580515 号(1996)「光電子分光方法」、
第 2764505 号 (1998)「電子分光方法とこれを用いた電子分光装置」、
US Patent No. 5569916 (1996).

22)
Y. Tezuka, M. Ito, T. Terasawa, and T. Tomie, “Actinic detection of multilayer defects on EUV mask blanks using LPP light source and dark-field imaging”,
Proc. SPIE **5374** (2004) 271.

23)
T. Terasawa, Y. Tezuka, M. Ito, and T. Tomie, “High-speed actinic EUV mask blank inspection with dark-field imaging”,
Proc. SPIE **5446** (2004) 804.

24)
H. Miyai, T. Kohyama, T. Suzuki, K. Takehisa, and H. Kusunose, “Actinic patterned mask defect inspection for EUV lithography”,
Proc. of SPIE **11148** (2019) 111480W.

25)
J. E. Bjorkholm et al., “Reduction imaging at 14 nm using multilayer-coated optics Printing of features smaller than 0.1 μm ”,
J. Vac. Sci. Technol. B **8** (1990) 1509.

26)
H. Kinoshita, K. Kurihara, Y. Ishii, and Y. Torii “Soft x-ray reduction lithography using multilayer mirrors”,
J. Vac. Sci. Technol. B **7** (1989) 1648.

27)
木下 博雄、北山 豊樹、金子 隆司、石原 直、“X 線縮小投影露光装置”、出願 Sep. 02, 1986.

28)
鳳紘一郎、谷野浩史 “Feasibility Study on the Extreme UV/Soft X-Ray Projection-type Lithography”,
電子技術総合研究所集報 **49** (1985) 983-990.

29)
E.Spiller, A. Segmuller, J.Rife, and R. Haelbich, “Controlled fabrication of multilayer soft-x-ray mirrors”,
Appl. Phys. Lett. **37** (1980) 1048.

30)
I. Lovas, W. Santy, E. Spiller, R. Tibbetts, and J. Wilczynski, “Design and assembly of a high resolution Schwarzschild microscope for soft x rays”,
Proc. SPIE **316** (1981) 90.

- 31)
J. H. Underwood, T. W. Barbee, and D. L. Shealy, “X-ray and extreme ultraviolet imaging using layered synthetic microstructures”,
Proc. SPIE **316** (1981) 79.
- 32)
富江敏尚、“EUV リソグラフィ用プラズマ光源に関する技術的考察”,
産総研技術報告 AIST01-A00007 (2002).
- 33)
T. Tomie, et al., “Use of tin as a plasma source material for high conversion efficiency”,
Proc. SPIE **5037** (2003) 148.
- 34)
T. Aota and T. Tomie, “Ultimate Efficiency of Extreme Ultraviolet Radiation from a Laser-Produced Plasma”,
Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 015004.
- 35)
T. Tomie, et al., “EUV generation using a droplet of a suspension including tin as a target of a high-efficiency LPP source for high volume production”,
Proc. SPIE. **6151** (2006) 61511P.
- 36)
垂井康夫、“超 L S I 共同研究所－共同研究所の元祖”
武田計測先端財団
<http://www.takeda-foundation.jp/reports/pdf/prj0101.pdf>

垂井康夫、“電子ビーム描画装置の開発”、
AIST 研究秘話 11、
https://sankoukai.org/secure/wp-content/uploads/untold_stories/yasuo-tarui_final.pdf
- 37)
“世界で圧倒的なシェアを誇る、電子ビームマスク描画装置”
株式会社ニューフレアテクノロジー 取材：November 2012
NEDO 超先端電子技術開発促進事業
<https://www.nedo.go.jp/hyoukabu/articles/201202nuflare/pdf/nuflare.pdf>
- 38)
T. Tomie, H. Kondo, and H. Shimizu, “Application of x-ray laser to photoelectron micro-spectroscopy”,
Inst. Phys. Conf. Ser. No 151, Proc. X-ray Lasers 1996, pp.520-527.
- 39)
科学技術振興調整費総合研究
「顕微光電子分光法による材料・デバイスの高度分析評価技術に関する研究」,
研究代表 富江敏尚 第II期成果報告書.
<https://www.jst.go.jp/shincho/database/pdf/19991080/2003/199910802003rr.pdf>
- 40)
足立伸一、田中義人 “ビームライン光学技術シリーズ (11) 光の時間構造を使う”,
放射光 **20** (2007) 117.
- 41)
高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光実験施設.
光源加速器 光源加速器のパラメーター.
<https://www2.kek.jp/imss/pf/apparatus/acc/>
- 42)
原田健太郎 “第 4 世代蓄積リング型放射光源の性能と設計”,
表面科学 **38** (2017) 571.
- 43)
佐々木 泰三 “光源加速器の誕生・・・SOR-RING 建設のいきさつ”,
加速器 **2** (2005) 433.

- 44)
E. Spiller et al., “X-Ray Microscopy of Biological Objects with Carbon K α and with Synchrotron Radiation”,
Science **191** (1976) 1172.
- 45)
R. Feder et al., “High-Resolution Soft X-Ray Microscopy”,
Science **197** (1977) 259.
- 46)
T. Tomie, H. Shimizu, T. Majima, T. Kanayama, M. Yamada, and E. Miura, “Flash contact x-ray microscopy of biological specimen in water”,
Proc. SPIE **1741** (1992) 118.
- 47)
R. A. London, M. D. Rosen, and J. E. Trebes, "Wavelength choice for soft x-ray laser holography of biological samples",
Appl. Opt. **28** (1989) 3397-3404.
- 48)
T. Tomie, et al. “Three-Dimensional Readout of Flash X-ray Images of Living Sperm in Water by Atomic-Force Microscopy”,
Science **252** (1991) 691.
- 49)
E. Spiller and R. Feder, “3.6.1 Performance of an Ideal Resist of 3. X-Ray Lithography” in *X-Ray Optics*, ed. H.J. Queisser (Springer, 1977) p.49.
- 50)
特許第 2642907 号、“X 線露光装置”、富江敏尚、清水秀明、間島利和、出願日 1995 年 06 月 14 日,
- 51)
Department of Energy, “DOE National Laboratory Makes History by Achieving Fusion Ignition”,
Dec. 13, 2022
<https://www.energy.gov/articles/doe-national-laboratory-makes-history-achieving-fusion-ignition>.
- 52)
J. Nuckolls, L. Wood, A. Thiessen, and G. Zimmerman, “Laser Compression of Matter to Super-High Densities: Thermonuclear (CTR) Applications”,
Nature **239** (1972)139–142.
- 53)
B. Li, T. Tomie, et al., “Thermionic emission in gold nanoparticles under femtosecond laser irradiation observed with photoemission electron microscopy”,
AIP Advances **9** (2019) 025112.
- 54)
T. Tomie, T. Kasai, and M. Yano, “Actively Mode-Locked and Q-Switched Phosphate Glass Oscillator”,
Jpn. J. Appl. Phys. **23** (1984) L476.
- 55)
T. Tomie, “Picosecond Pulse Generation by Self-Phase Modulation in an Actively Mode-Locked and Q-Switched Phosphate Glass Laser”,
Jpn. J. Appl. Phys. **24** (1985) 1008.
- 56)
I. Matsushima, H. Yashiro, and T. Tomie, “10 kHz 54 W Ti:sapphire regenerative amplifier as a pumping laser of a laser-plasma X-ray source”,
Proc. SPIE **7022** (2008) 70220M.
- 57)
C. Chenais-Popovics, T. Tomie, et al., “Laser amplification at 18.2 nm in recombining plasma from a laser-irradiated carbon fiber”,
Phys. Rev. Lett. **59** (1987) 2161.
- 58)

- M. Grande, T. Tomie, et al., “Measurement and detailed analysis of single pass gain at 81 Å in a recombining laser produced fluorine plasma”,
Opt. Commun. **74** (1990) 309-312.
- 59)
T. Tomie, E. Miura, I. Okuda, and Y. Owadano, “Fluorine recombination X-ray laser pumped by 10 ps KrF laser pulse”,
AIP Conf. Proc. **332**, (1995) 171.
- 60)
三浦永祐、富江敏尚、“波長 30Å～250Å における Kodak101 フィルムの較正”,
レーザー研究 **21** (1993) 1011.
- 61)
T. Tomie, et al., “X-ray lithography using a KrF laser-produced plasma”,
Proc. SPIE **831** (1987) 224.
- 62)
H. Kondo and T. Tomie, “Optimization of a laser-plasma x-ray source for contact x-ray microscopy”,
J. Appl. Phys. **75** (1994), 3798.
- 63)
T. Allenet, et al. “EUV resist screening update: progress towards High-NA lithography”,
Proc. SPIE **12055** (2022) 120550F.
- 64)
P. P. Naulleau, et al., “Critical challenges for EUV resist materials”,
Proc. SPIE **7972** (2011) 797202.
- 65)
3. T. Tomie, et al.: “Study of a Cavity Confined Plasma as a Debris-less and High Conversion Efficiency EUV Source”, 2nd Int. Workshop on EUV Lithography, (October 2000, San Francisco, CA, USA).
- 66)
T. Tomie, et al.: “Theoretical consideration on plasma source for 50W EUV power extraction”, 3rd Int. Workshop on EUV Lithography, (October 2001, Matsue).
- 67)
Scotten Jones “ASML EUV Update at SPIE”,
IC Knowledge 06-24-2022.
<https://semiwiki.com/semiconductor-services/ic-knowledge/314387-asml-euv-update-at-spie/>.
- 68)
T. Tomie et al.: “Particle-cluster tin target for a high conversion efficiency LPP source for EUVL”,
Proc. SPIE **5374** (2004) 383
- 69)
T. Tomie, H. Yashiro, E. Miura, P. Lu, and I. Matsushima, “Exploding-type pumping of plasma for high efficiency x-ray laser”,
Proc. SPIE **3157** (1997) 272.
- 70)
特許 開 2021-25935 “過渡的電子親和力による材料の評価方法および触媒等材料”、富江敏尚、出願日 2021 年 02 月 22 日。
- 71)
T. Tomie, “The birth of the X-ray refractive lens”,
Spectrochimica Acta B **65** (2010) 192,
特許 第 2526409 号、“X 線レンズ”、富江敏尚、出願日 1994 年 02 月 18 日,
US patent No. 5684852, “X-ray lens”, T. Tomie, filed 1996 Oct 25.

著者略歴

富江 敏尚 (Toshihisa Tomie)

1976 年京都大学大学院理学研究科修士課程物理学第一専攻修了。

同年工業技術院電子技術総合研究所入所。極限技術部高温技術研究室配属、基礎部電子物理研究室に併任。

1982 年基礎部電子物理研究室の併任解除。

1985 年 京都大学博士 (理学)。

1986 年科学技術庁原子力関係長期留学制度で英国ラザフォード・アップルトン研究所の客員研究員。

2001 年産業技術総合研究所 次世代半導体研究センター

2008 年ナノ電子デバイス研究センター

2012 年 3 月定年退職

産業技術総合研究所研究顧問、NEDO プログラムマネージャー、産総研招聘研究員。

2014 年 7 月中華人民共和国長春理工大特聘教授。

2019 年 9 月中国政府友誼奨。

大出力ガラスレーザ、X 線顕微鏡、X 線レーザー、光電子分光、表面分析、EUVL 用光源等の研究に従事した。EUPS、X線屈折レンズ、多層膜マスクブランク欠陥検査法等を発明。

受理日：令和5年3月12日
