

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年2月18日(18.02.2021)



(10) 国際公開番号

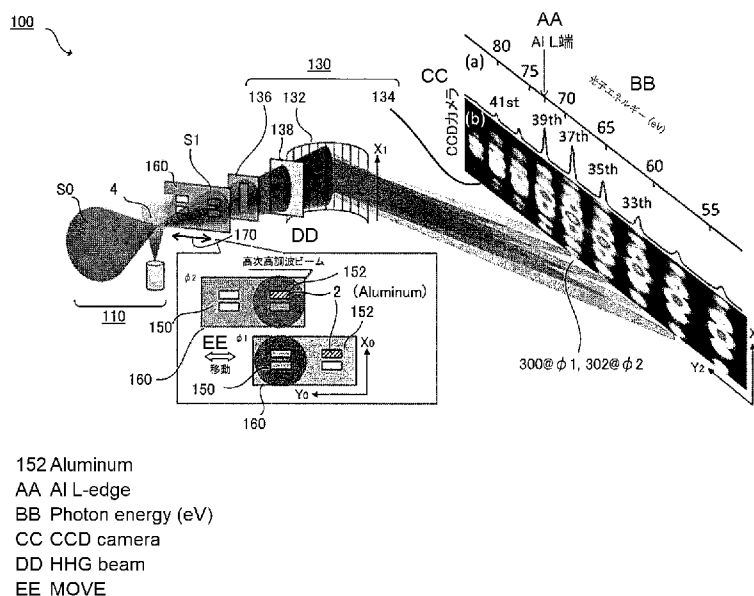
WO 2021/029435 A1

- (51) 国際特許分類:
G01N 23/02 (2006.01) G01N 21/41 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/030878
- (22) 国際出願日: 2020年8月14日(14.08.2020)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
62/887,077 2019年8月15日(15.08.2019) US
- (71) 出願人: 国立大学法人東京大学 (THE UNIVERSITY OF TOKYO) [JP/JP]; 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目3番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 平野 大輔 (HIRANO Daisuke); 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目3番1号 国立大学法人東京大学内 Tokyo (JP). 五神 真 (GONOKAMI Makoto); 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目3番1号 国立大学法人東京大学内 Tokyo (JP). 吉岡 孝高 (YOSHIOKA Kosuke); 〒1138654 東京都文京区本郷七丁目3番1号 国立大学法人東京大学内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 森下 賢樹 (MORISHITA Sakaki); 〒1500021 東京都渋谷区恵比寿西2-11-12 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,

(54) Title: OPTICAL CONSTANT MEASURING DEVICE, METHOD FOR MEASURING OPTICAL CONSTANT, AND METHOD FOR CALCULATING OPTICAL CONSTANT

(54) 発明の名称: 光学定数測定装置および光学定数の測定方法、光学定数の計算方法

[図 2]



(57) Abstract: A coherent light source 110 outputs coherent light including high order harmonics obtained by shining short pulse laser light onto a nonlinear medium 4. A spectrometer 130 includes a diffraction grating 132 for diffracting the coherent light, and an image sensor 134 for capturing an image of the light that has been diffracted by the diffraction grating 132. A first double slit 150 has a pair of openings that are separated in a first direction, and, in a first state, is disposed in a predetermined position between the coherent light source 110 and an incident slit of the spectrometer 130. A

CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

second double slit 152 has a pair of openings replicating the first double slit 150, and, in a second state, is disposed in such a way as to replace the first double slit 150 in the predetermined position, with a sample being held in one of the pair of openings. An arithmetic processing device 200 calculates an optical constant of the sample 2 on the basis of interference images obtained in each of the first state and the second state.

(57) 要約: コヒーレント光源 110 は、短パルスレーザ光を非線形媒質 4 に照射して得られる高次高調波を含むコヒーレント光を出力する。分光器 130 は、コヒーレント光を回折する回折格子 132 と、回折格子 132 により回折された光を撮像するイメージセンサ 134 を含む。第 1 ダブルスリット 150 は、第 1 方向に離間する開口ペアを有し、第 1 状態において、コヒーレント光源 110 と分光器 130 の入射スリットの間の所定位置に配置される。第 2 ダブルスリット 152 は、第 1 ダブルスリット 150 のレプリカである開口ペアを有し、第 2 状態において、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した状態で、所定位置に第 1 ダブルスリット 150 と置換して配置される。演算処理装置 200 は、第 1 状態と第 2 状態それぞれにおいて得られる干渉像にもとづいて、サンプル 2 の光学定数を計算する。

明 細 書

発明の名称：

光学定数測定装置および光学定数の測定方法、光学定数の計算方法

技術分野

[0001] 本発明は、複素屈折率などの光学定数の測定技術に関する。

背景技術

[0002] E U V リソグラフィーをはじめとした E U V 領域における光技術の応用を進めるためには位相を含めた光パラメータの高度な制御が必要である。そのためには多層膜ミラーやマスクなどの光学素子の高度化が必要であるが（非特許文献 2，3）、E U V 領域の光学定数は十分には知られておらずそのデータベース化が不可欠である。

[0003] これまで E U V 領域の屈折率測定方法はいくつか提案されてきた。最も知られているのは Henke らの仕事である。吸収スペクトルの Kramers-Kronig 変換から屈折率の実部を得る手法であるが、得られた値の精度に問題があることが指摘されている（非特許文献 5，28，29）。

[0004] 新しい測定手法としてダブルスリット干渉を用いた測定手法が提案されている。この手法はコヒーレントな光によって得られるダブルスリット干渉像から 2 つの光路の相対強度と、光路差によって生じる位相差を得ることで複素屈折率を直接導き出すことができる。

[0005] インコヒーレントな放射光を光源とする場合、コヒーレンスを取り出したあとの光量子束密度は著しく低下する。低下した光量子束密度を最大限利用するための光学系が必要であるが、その光学系は波長ごとに異なる配置を要するため、分散測定の際は機械駆動による系統的な不確定性が生じやすい（非特許文献 8）。

先行技術文献

非特許文献

[0006] 非特許文献 1：W. Chao, J. Kim, S. Rekawa, P. Fischer, and E. H. Anders

on, Opt. Exp., 17, 17669 (2009).

非特許文献2: M. Goldstein, R. Hudyma, P. Naulleau, and S. Wurm, Opt. Lett., 33, 2995 (2008).

非特許文献3: S. Bajt, J. B. Alameda, T. W. Barbee, W. M. Clift, J. A. Folta, B. B. Kaufmann, and E. A. Spiller, Opt. Eng., 41, 1797 (2002).

.

非特許文献4: D. G. Stearns, R. S. Rosen, and S. P. Vernon, Appl. Opt., 32, 6952 (1993). ;

非特許文献5: A. K. Ray-Chaudhuri, S. E. Gianoulakis, P. A. Spence, M. P. Kanouff, and C. D. Moen, in Emerging Lithographic Technologies II (International Society for Optics and Photonics, 1998), pp. 124-133.

非特許文献6: B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, Atomic Data and Nuclear Data Tables 54, 181 (1993).

非特許文献7: H.-G. Birken, W. Jark, C. Kunz, and R. Wolf, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 253, 166 (1986).

非特許文献8: C. Chang, E. Anderson, P. Naulleau, E. Gullikson, K. Goldberg, and D. Attwood, Opt. Lett. 27, 1028 (2002).

非特許文献9: E. M. Gullikson, P. Denham, S. Mrowka, and J. H. Underwood, Phys. Rev. B 49, 16283 (1994).

非特許文献10: D. S. Gianola, S. Van Petegem, M. Legros, S. Brandstetter, H. Van Swygenhoven, and K. J. Hemker, Acta Materialia 54, 2253 (2006).

非特許文献11: B.-T. Chou, Y.-H. Chou, Y.-M. Wu, Y.-C. Chung, W.-J. Hsueh, S.-W. Lin, T.-C. Lu, T.-R. Lin, and S.-D. Lin, Scientific Reports 6, 19887 (2016).

非特許文献12: P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993).

非特許文献13: P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Aude,

P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Science* 292, 1689 (2001).

非特許文献14 : R. A. Bartels, A. Paul, H. Green, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, S. Backus, I. P. Christov, Y. Liu, D. Attwood, and C. Jacobsen, *Science* 297, 376 (2002).

非特許文献15 : J. J. Macklin, J. D. Kmetec, and C. L. Gordon, *Phys. Rev. Lett.* 70, 766 (1993).

非特許文献16 : T. Popmintchev, M.-C. Chen, P. Arpin, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Nature Photonics* 4, 822 (2010).

非特許文献17 : M. R. Alexander, G. E. Thompson, X. Zhou, G. Beamson, and N. Fairley, *Surf. Interface Anal.* 34, 485 (2002).

非特許文献18 : A. Das, R. K. Gupta, M. H. Modi, C. Mukherjee, S. K. Rai, A. Bose, T. Ganguli, S. C. Joshi, G. S. Lodha, and S. K. Deb, *Applied Optics* 51, 7402 (2012).

非特許文献19 : R. Keenan, C. L. S. Lewis, J. S. Wark, and E. Wolfrum, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 35, L447 (2002).

非特許文献20 : M. M. Barysheva, A. E. Pestov, N. N. Salashchenko, M. N. Toropov, and N. I. Chkhalo, *Phys.-Usp.* 55, 681 (2012).

非特許文献21 : Y. Li, K. Ota, and K. Murakami, *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* 21, 127 (2002).

非特許文献22 : D. Descamps, C. Lynga, J. Norin, A. L' Huillier, C.-G. Wahlstrom, J.-F. Hergott, H. Merdji, P. Salieres, M. Bellini, and T. W. Hansch, *Opt. Lett.*, 25, 135 (2000).

非特許文献23 : D. Hemmers, M. Benzid, and G. Pretzler, *Appl. Phys. B* 108, 167 (2012).

非特許文献24 : L. A. Wilson, A. K. Rossall, E. Wagenaars, C. M. Cacho, E. Springate, I. C. E. Turcu, and G. J. Tallents, *Appl. Opt.* 51, 2057 (2012).

非特許文献25 : K. A. Goldberg, R. Beguiristain, J. Bokor, H. Medeck, D. T. Attwood, K. Jackson, E. Tejn, and G. E. Sommargren, *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* 13, 2923 (1995).

非特許文献26 : D. G. Lee, J. J. Park, J. H. Sung, and C. H. Nam, *Opt. Lett.*, 28, 480 (2003).

非特許文献27 : P. Mercere, P. Zeitoun, M. Idir, S. L. Pape, D. Douillet, X. Levecq, G. Dovillaire, S. Bucourt, K. A. Goldberg, P. P. Naulleau, and S. Rekawa, *Opt. Lett.*, 28, 1534 (2003).

非特許文献28 : H. Yan, C. Wang, A. R. McCarn, and H. Ade, *Phys. Rev. Lett.* 110, 177401 (2013)

非特許文献29 : D. L. Windt, in *Solar Physics and Space Weather Instrumentation VI* (International Society for Optics and Photonics, 2015), p. 96040P.

非特許文献30 : G. W. Fraser, A. F. Abbey, A. Holland, K. McCarthy, A. Owens, and A. Wells, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 350, 368 (1994).

非特許文献31 : M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, "Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry," *J. Opt. Soc. Am.*, 72(1), 156-160 (1982).

非特許文献32 : A. R. Thompson, J. M. Moran, and G. W. Swenson, "Van Cittert-Zernike Theorem, Spatial Coherence, and Scattering," in *Interferometry and Synthesis in Radio Astronomy*, A. R. Thompson, J. M. Moran, and G. W. Swenson Jr., eds. (Springer International Publishing, 2017), pp. 767-786.

非特許文献33 : E. Frumker, G. G. Paulus, H. Niikura, D. M. Villene, and P. B. Corkum, "Frequency-resolved high-harmonic wavefront character

ization," Opt. Lett. 34(19), 3026-3028 (2009).

非特許文献34 : D. T. Lloyd, K. O' Keefe, and S. M. Hooker, "Complete spatial characterization of an optical wavefront using a variable-separation pinhole pair," Opt. Lett. 38(7), 1173-1175 (2013).

非特許文献35 : J. Dobaczewski, W. Nazarewicz, and P.-G. Reinhard, "Error estimates of theoretical models: a guide," J. Phys. G Nucl. Part. Phys. 41(7), 074001 (2014).

非特許文献36 : P. Sinervo, "Definition and Treatment of Systematic Uncertainties in High Energy Physics and Astrophysics," (2003).

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0007] コヒーレントな光源である高次高調波を用いることで上記のインコヒーレント光源の問題が生じない干渉測定が可能である。この光源は高いコヒーレンスと広い帯域を持つため屈折率とその分散測定に理想的な光源と言える。
- [0008] これまで高調波を利用した測定が報告されているが、あくまで原理検証に過ぎずその測定精度は 1 rad 程度と非常に悪い。また高調波の強度は基本波の奇数次にピークを持つため観測する波長は限定されるが、実用的には任意の波長が必要である。
- [0009] EUV領域の光学素子の設計のためには任意の波長の複素屈折率測定が可能であり、なおかつ高い測定精度を達成することが求められる。
- [0010] 本開示はかかる状況においてなされたものであり、その例示的な目的のひとつは、光学定数の測定精度の改善にある。

課題を解決するための手段

- [0011] 本開示の一態様に係る光学定数測定装置は、コヒーレント光源、分光器、第1ダブルスリット、第2ダブルスリット、演算処理装置を備える。コヒーレント光源は、短パルスレーザ光を非線形媒質に照射して得られる高次高調波を含むコヒーレント光を出力する。分光器は、コヒーレント光を回折する回折格子および回折格子により回折された光を撮像するイメージセンサを含

む。第1ダブルスリットは、第1方向に離間する開口ペアを有し、第1状態において、コヒーレント光源と分光器の入射スリットの間の所定位置に配置される。第2ダブルスリットは、第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、第2状態において、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した状態で、所定位置に第1ダブルスリットと置換して配置される。演算処理装置は、第1状態において、コヒーレント光の高調波がイメージセンサに形成する第1干渉像と、第2状態において、高調波がイメージセンサに形成する第2干渉像と、にもとづいて、サンプルの光学定数を計算する。

[0012] なお、以上の構成要素の任意の組合せ、本発明の表現を装置、方法、システムなどの間で変換したものもまた、本発明の態様として有効である。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、高調波ベースの干渉計の精度を従来と比べて向上し、放射光ベースの干渉計と同等以上の精度を実現できる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]ダブルスリットによる屈折率の測定原理を説明する図である。

[図2]実施形態に係る光学定数測定装置を示す図である。

[図3]高次高調波発生の特長を示す図である。

[図4]一次元フレネル回折モデルにもとづく干渉像の形成を説明する図である。

[図5]実験に用いた光学定数測定装置を示す図である。

[図6]図6 (a)、(b)は、波長650nmの基本波から得られた39次高調波の干渉像の信号強度を示す図である。

[図7]実験により得られた θ および L を示す図である。

[図8]実験により得られた屈折率を示す図である。

[図9]A1/Zr多層膜ミラーの反射率の計算結果を示す図である。

発明を実施するための形態

[0015] (実施形態の概要)

本開示のいくつかの例示的な実施形態の概要を説明する。この概要は、後

述する詳細な説明の前置きとして、実施形態の基本的な理解を目的として、1つまたは複数の実施形態のいくつかの概念を簡略化して説明するものであり、発明あるいは開示の広さを限定するものではない。またこの概要は、考えられるすべての実施形態の包括的な概要ではなく、実施形態の欠くべからざる構成要素を限定するものではない。便宜上、「一実施形態」は、本明細書に開示するひとつの実施形態（実施例や変形例）または複数の実施形態（実施例や変形例）を指すものとして用いる場合がある。

[0016] 一実施形態に係る光学定数測定装置は、短パルスレーザ光を非線形媒質に照射して得られる高次高調波を含むコヒーレント光を出力するコヒーレント光源と、コヒーレント光を回折する回折格子および回折格子により回折された光を撮像するイメージセンサを含む分光器と、第1方向に離間する開口ペアを有し、第1状態において、コヒーレント光源と分光器の入射スリットの間の所定位置に配置される第1ダブルスリットと、第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、第2状態において、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した状態で、所定位置に第1ダブルスリットと置換して配置される第2ダブルスリットと、第1状態において、コヒーレント光の高調波がイメージセンサに形成する第1干渉像と、第2状態において、高調波がイメージセンサに形成する第2干渉像と、にもとづいて、サンプルの光学定数を計算する演算処理装置と、を備える。

[0017] 第1状態においてサンプルなしのダブルスリットの干渉像を測定し、第2状態においてサンプルありのダブルスリットの干渉像を測定し、2つの干渉像を利用することで、サンプルの光学定数を定量的に取得することができる。

[0018] なお本開示において、「光学定数」とは、典型的には屈折率、より詳しくは複素屈折率であるが、その限りでなく、屈折率が既知である材料の厚みや、非透明材料の透過率なども含むものとする。

[0019] 一実施形態において、光学定数測定装置はパラメータを用いてモデル化されてもよい。光学定数測定装置のモデルにもとづいて、ダブルスリットの干

渉像をモデル化することができ、測定された干渉像と整合するように、モデルのパラメータを最適化することで、サンプルの光学定数と、光学定数測定装置の誤差を内包するパラメータを、定量的に取得できる。

[0020] 演算処理装置は、光学定数測定装置のモデルにもとづき、第1状態および第2状態においてイメージセンサ上に形成される強度分布を、一次元フレネル回折の式により計算し、計算された強度分布が、第1干渉像および第2干渉像に近づくように、モデルのパラメータおよびサンプルの光学定数を取得してもよい。

[0021] 高次高調波のダブルスリット干渉像をモデル化することによって、モデル関数のパラメータとして光学定数を定量的に評価することができる。また観測値の統計的な不確定量を実測によって定量化し、ダブルスリットの設計を光学定数の不確定量が最も小さくなるよう最適化することも可能である。

[0022] 第1ダブルスリットおよび第2ダブルスリットの開口は、誤差関数を用いてモデリングされてもよい。これにより開口をステップ関数でモデリングした場合に比べて、ナイキスト周波数以上の高周波成分を取り除くことができる。

[0023] 第1干渉像および第2干渉像は、コヒーレント光の複数回の照射の積算として得られるものであり、第1ダブルスリットおよび第2ダブルスリットへの入射波の波面の関数は、その中心位置が、正規分布でばらついているものとして扱われてもよい。

[0024] 一実施形態において、第1ダブルスリットと第2ダブルスリットは、第1方向と垂直な第2方向に連続して形成され、光学定数測定装置は、第1ダブルスリットおよび第2ダブルスリットを、第2方向にシフトさせるステージをさらに備えてもよい。

[0025] 一実施形態において、コヒーレント光源は、光パラメトリック増幅器を含み、短パルスレーザ光の波長が可変であってもよい。この構成によれば、基本波の波長の最適化と、高次高調波の次数の組み合わせによって、EUV領域の任意の波長で干渉像を得ることが可能となる。

[0026] 一実施形態において、コヒーレント光源は、短パルスレーザ光を発生する主光源と、非線形媒質であるガスを噴射するガスノズルと、短パルスレーザ光をガスに集光する集光光学系と、集光光学系における短パルスレーザ光の平行光と集光点の二箇所における短パルスレーザ光の位置をモニタし、集光光学系の光学素子の機械的狀態を制御する安定化装置と、を含んでもよい。これにより、ビームポインティングを安定化でき、測定系の不確定性を減らすことができる。

[0027] 本開示の一実施形態は、屈折率の測定方法である。この方法は、短パルスレーザ光を非線形媒質に照射し、高次高調波を含むコヒーレント光を生成するステップと、コヒーレント光を、第1方向に離間する開口ペアを有する第1ダブルスリットに通過させ、第1干渉像を測定するステップと、コヒーレント光を、第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した第2ダブルスリットを通過させ、第2干渉像を測定するステップと、第1干渉像と第2干渉像にもとづいて、サンプルの光学定数を計算するステップと、を備える。

[0028] 本開示の一実施形態は、光学定数の計算方法である。この方法は、測定系により得られる第1干渉像および第2干渉像にもとづいてサンプルの光学定数を計算する方法であって、測定系は、短パルスレーザ光を非線形媒質に照射して得られる高次高調波を含むコヒーレント光を出力するコヒーレント光源と、コヒーレント光を回折する回折格子および回折格子により回折された光を撮像するイメージセンサを含む分光器と、第1方向に離間する開口ペアを有し、第1状態において、コヒーレント光源と分光器の入射スリットの間、の所定位置に配置される第1ダブルスリットと、第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、第2状態において、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した状態で、所定位置に第1ダブルスリットと置換して配置される第2ダブルスリットと、を備える。第1干渉像は、第1状態において、コヒーレント光の高調波がイメージセンサに形成されるものであり、第2干渉像は、第2状態において、高調波がイメージセンサに形成されるもの

であり、計算方法は、第1状態および第2状態における測定系のモデルを規定するステップと、第1状態の測定系のモデルが形成する第1回折パターンを一次元フレネル回折の式にもとづいて計算するステップと、第2状態の測定系のモデルが形成する第2回折パターンを一次元フレネル回折の式にもとづいて計算するステップと、第1回折パターンが第1干渉像に近づき、第2回折パターンが第2干渉像に近づくように、測定系のモデルのパラメータおよびサンプルの光学定数を計算するステップと、を備える。

[0029] (実施形態)

以下、本発明を好適な実施の形態をもとに図面を参照しながら説明する。各図面に示される同一または同等の構成要素、部材、処理には、同一の符号を付するものとし、適宜重複した説明は省略する。また、実施の形態は、発明を限定するものではなく例示であって、実施の形態に記述されるすべての特徴やその組み合わせは、必ずしも発明の本質的なものであるとは限らない。

[0030] (複素屈折率の測定原理)

図1は、ダブルスリットによる屈折率の測定原理を説明する図である。ダブルスリット干渉像の形状を解析することによって2つのスリット（ダブルスリット）を透過する電場の光路差と強度比を推定できる（非特許文献8）。片方のスリットに試料（サンプル2）を設置した場合の電場の光路差と強度比は試料の屈折率と厚さによって決まる。そのため推定した2つのパラメータすなわち位相 θ と電場強度比 L から以下の式（1）より試料の複素屈折率を直接求めることができる。

[0031] [数1]

$$\theta = 2\pi\sigma d/\lambda, L = \exp(-2\pi d\beta/\lambda) \quad \cdots(1)$$

[0032] ここで d はサンプル2の膜厚、 λ は波長、屈折率 $N = 1 - \sigma + i\beta$ である。

[0033] ただし、位相 θ と電場強度比 L を推定し、複素屈折率を計算する手法は、

精度の点で十分であるとは言えず、改善の余地がある。そこで本実施形態では、後述するようにこれとは別の解析手法にもとづいて、複素屈折率を計算する。

[0034] (測定装置)

図2は、実施形態に係る光学定数測定装置100を示す図である。光学定数測定装置100による測定は、第1状態 $\phi 1$ と第2状態 $\phi 2$ の二状態で行われる。光学定数測定装置100は、主として、コヒーレント光源110、分光器130、第1ダブルスリット150、第2ダブルスリット152、演算処理装置200を備える。

[0035] 干渉実験のためには高いコヒーレンスを持つ光源が求められる。本実施形態では、光源をレーザーベースの高次高調波にすることで空間コヒーレンスの高い光源とした。コヒーレント光源110は、短パルスレーザー光S0を非線形媒質に照射し、その結果得られる高次高調波を含むコヒーレント光S1を出力する。非線形媒質4は、複素屈折率を測定したい波長において高い輝度の高次高調波が得られる元素を選ばよく、たとえば希ガス(He, Ne, Ar, Kr, Xe)の中から選択することができる。

[0036] 図3は、高次高調波発生(HHG: High-order Harmonic Generation)のスペクトルを示す図である。高次高調波は基本波の奇数倍のエネルギーにピークを持ち、広帯域にわたり強度が次数によらず一定となる(プラトー領域という)。広い帯域を活かした測定を行うため干渉光を回折格子により回折し、イメージセンサ(たとえば2次元CCDカメラ)に結像することで干渉像の分光を行った。基本波の波長を可変にすることによりEUV領域の任意の波長で屈折率測定を可能とした。

[0037] 図2に戻る。分光器130は、回折格子132、イメージセンサ134、入射スリット136、フィルタ138などを含む。回折格子132は、コヒーレント光S1を回折する。イメージセンサ134は、回折格子132により回折された光を撮像する。フィルタ138は、入射スリット136を通過した光のうち、基本波成分を除去し、高調波成分を通過させる。フィルタ1

38はたとえばアルミニウムの薄膜（アルミニウムフィルタ）を用いることができる。

[0038] 第1ダブルスリット150は、第1方向（図中、鉛直方向Y）に離間する一对のスリット（開口ペア）を有する。第1ダブルスリット150は、第1状態 ϕ 1において、コヒーレント光源110と分光器130の入射スリット136の間の所定位置に配置される。

[0039] 第1状態 ϕ 1において、第1ダブルスリット150が、コヒーレント光S1の高調波に作用することにより、イメージセンサ134上に第1干渉像300が形成される。干渉像は、高調波の次数ごとに形成される。

[0040] 第2ダブルスリット152は、開口ペアを有する。この開口ペアは、第1ダブルスリット150の開口ペアと同一形状、同一寸法を有するレプリカである。第2ダブルスリット152は、第2状態 ϕ 2において、開口ペアの一方の開口にサンプル2を保持した状態で、所定位置に第1ダブルスリット150と置換して配置される。

[0041] 第2状態 ϕ 2において、サンプル2を保持する第2ダブルスリット152が、コヒーレント光S1の高調波に作用することにより、イメージセンサ134上に第2干渉像302が形成される。

[0042] 好ましくは、第1ダブルスリット150と第2ダブルスリット152は、第1方向Yと垂直な第2方向Xに連続して一体に形成される。これをサンプルホルダ160と称する。第1ダブルスリット150と第2ダブルスリット152を一体形成することで、第1状態 ϕ 1と第2状態 ϕ 2における開口の位置ズレを低減することができる。好ましくは、サンプルホルダ160は、可動ステージ170によって、第2方向Xに位置決め可能となっている。

[0043] 演算処理装置200は、第1状態において測定される第1干渉像300と、第2状態において測定される第2干渉像302と、にもとづいて、サンプル2の複素屈折率を計算する。

[0044] 光学定数測定装置100は、パラメータを用いてモデル化されている。パラメータは、変数（未知の値）と、定数（既知の値）を含んでもよい。誤差

要因が大きいパラメータは、変数として扱い、誤差が無視できるパラメータは定数として扱ってもよい。

[0045] 演算処理装置200は、光学定数測定装置100のモデルにもとづき、第1状態および第2状態においてイメージセンサ134上に形成される干渉像の強度分布を、一次元フレネル回折の式により計算する。

[0046] 図4は、一次元フレネル回折モデルにもとづく干渉像の形成を説明する図である。I(x)は、スクリーンであるイメージセンサ134のセンサ面の強度分布である。この例では光学定数測定装置100は、(i) ダブルスリットに入射するコヒーレント光の波面、(ii) ダブルスリット150、152、(iii) ダブルスリット150、152と回折格子132の間の自由空間180、(iv) 回折格子132、(v) 回折格子132とイメージセンサ134の間の自由空間182、を要素としてモデリングされる。

[0047] (i) 関数 $g(\xi)$ は、波面を表すモデルである。

(ii) 関数 $f(\xi)$ は、ダブルスリットの開口を表すモデルである。

(iv) 関数 $W(\rho)$ は、回折格子132を表すモデルである。

自由空間180、182は、一般的な自由空間の伝搬として扱うことができる。

ξ は、ダブルスリットにおける縦方向の位置を表す独立変数である。

ρ は、回折格子における縦方向の位置を表す独立変数である。

x は、イメージセンサのセンサ面における縦方向の位置を表す独立変数である。

サンプル2の複素屈折率は、ダブルスリットのモデル $f(\xi)$ に内包した形で表すことができる。具体的には、第1状態 $\phi 1$ のモデル $f(\xi)$ は、サンプル2に依存せず、第2状態 $\phi 2$ のモデル $f(\xi)$ は、サンプル2の複素屈折率を含む。

[0048] 演算処理装置200は、第1状態 $\phi 1$ のモデルにもとづいて計算された干渉像の強度分布が、第1干渉像300に近づくように、かつ、第2状態 $\phi 2$ のモデルにもとづいて計算された干渉像の強度分布が、第2干渉像302に

近づくように、モデルのパラメータおよびサンプル2の複素屈折率を取得する。

[0049] 以上が光学定数測定装置100の構成である。

[0050] (実験)

光学定数測定装置100の実験結果を説明する。

[0051] 図5は、実験に用いた光学定数測定装置100を示す図である。

[0052] <コヒーレント光源110>

コヒーレント光源110は、主光源112と、光パラメトリック増幅器114で構成した。主光源112として、モードロックチタンサファイアレーザーを再生増幅したコヒーレント社のLegend Elite Duo (5 kHz, 2.2 mJ)を用いた。光パラメトリック増幅器114としては、Light conversion社 Topas prime 及び NirUVis を用い、それから取り出したシグナル光の第二高調波を、高次高調波発生の基本波である短パルスレーザ光S0として用いた。波長は640~670 nmの13波長である。FC spiderで測定したところ、パルス幅は25 fsであった。この構成によれば、基本波(短パルスレーザ光S0)の波長の最適化と、高次高調波の次数の組み合わせによって、EUV領域の任意の波長で干渉像を得ることが可能となる。

[0053] 高調波発生为非線形媒質4としては、Neonガスを用いた。コヒーレント光源110と非線形媒質4の間には、集光光学系116が構成されている。真空チャンバ102内にある直径200 μ mのガスノズル104より吹き出したNeonガスに、直径25 mmの基本波を集光光学系116により集光した。集光光学系116は主として、 $f=300$ mmのミラー118を含む。基本波の集光サイズは約8 μ mと見積もられる。Neonガスから発生した高次高調波は基本波と同軸に伝播しダブルスリット150, 152に到達する。ダブルスリット150, 152に照らされた高次高調波のコヒーレンスは十分高いため、ダブルスリット150, 152を通過した波面は、図2のX₀方向(鉛直方向)に干渉しながら、入射波面のポインティングベクトルと同軸に伝播する。

- [0054] 実験では回折格子 1 3 2 として、トロイダルグレーティングを用いた。分光器 1 3 0 の入射スリット 1 3 6 を通過した高調波はトロイダルグレーティングに到達し、図 2 の C C D カメラの X 軸方向に回折する。分光器 1 3 0 の入射スリット 1 3 6 における干渉像がトロイダルグレーティングによって次数ごとに分光されつつ C C D カメラ上に結像されるよう配置してある。用いた C C D カメラは Andor D0940P BN、トロイダルグレーティングは HORIBA JOB IN YVON 541 00 200 である。波長校正は McPHERSON の Model 629 を用いた。
- [0055] ダブルスリット 1 5 0, 1 5 2 を含むサンプルホルダ 1 6 0 は可動ステージ 1 7 0 により移動可能であるため、高調波を発生しながら両方空のダブルスリット（第 1 ダブルスリット 1 5 0）と、片方にサンプル 2 を貼り付けたダブルスリット（第 2 ダブルスリット 1 5 2）に切り替えが可能である。
- [0056] 実験では、一つの基本波波長に対して両方空の第 1 ダブルスリット 1 5 0 と、サンプル 2 を設置した第 2 ダブルスリット 1 5 2 について一度ずつ干渉測定を行った。一測定あたり 1×10^6 パルスの積算に相当する 2 0 0 秒積算を行った。後述するように基本波の光路のドリフトは推定する位相シフトの系統誤差の要因になるためアクティブ制御により光路のドリフトを最小限に押さえている。
- [0057] <サンプル 2>
- サンプルはアルミニウム薄膜であり、Luxel から購入した。膜厚は 156 ± 5 nm である。酸化膜が存在する場合、サンプルの屈折率は有効屈折率として現れる。エリプソメーターで評価したところ片面 1 0 nm の酸化膜が存在することがわかった。そこで A r スパッタリングにより表裏それぞれ酸化膜を除去した。除去後は酸素が存在しない環境（分圧 1 0 0 Pa 以下）に保って取り扱い、実験を行った。実験後の酸化膜の膜厚は表裏合わせて 6.5 nm であった。以上によりアルミニウム膜厚 134.5 ± 5 nm、酸化膜厚 6.5 nm のサンプルと考えられる。
- [0058] 集光光学系 1 1 6、ガスノズル 1 0 4、サンプルホルダ 1 6 0 は、分光器 1 3 0 と連結される真空チャンバ 1 0 2 内に配置される。分光器 1 3 0 およ

び真空チャンバ102内は、ポンプによって真空に保たれている。

[0059] <実験結果>

CCDカメラは横(Y)縦(X)=2048x512ピクセルの画素数を持つ。この二次元CCD格子に結像した高調波の干渉像を以下の操作で各次数ごとの一次元干渉像に変換した。各次数の高調波のCCD面上のY₂方向の幅は波長幅及び分光器の装置関数のため有限の値(FWHM=9pixel)を持っている。そこで着目する次数の強度を得るためピーク強度にあたる位置を中心に15ピクセル分の信号強度を積分し、その値を各次数の信号強度とした。

[0060] 図6(a)、(b)は、波長650nmの基本波から得られた39次高調波の干渉像の信号強度を示す。横軸は2次元CCDカメラのY軸上の位置を表す。図6(a)は、第1状態φ₁において得られる第1ダブルスリット150の干渉像300であり、図6(b)は、第2状態φ₂において得られる第2ダブルスリット152の干渉像302である。図6(a)、(b)間で、2つの干渉像300、302のフリンジ位置と明暗度が変化している。図6(a)、(b)において、丸のプロットは測定された干渉像を、実線のプロットは計算から得られる干渉像を示す。

[0061] <解析>

干渉像の形状からサンプル2を透過した際の光路長の変化に伴う位相変化と電場の減衰率を評価するための解析を検討した。干渉像のフリンジパターンを解析する際はその簡便さからフーリエ変換法が用いられることが多い(非特許文献31)。この解析は着目する周波数成分の各点における位相を抽出する手法である。だが位相項はサンプルを透過することによる光路差だけではなく、スリット開口の幾何学的な形状や配置が寄与する。よって光路差を評価するためには各成分の位相への寄与を明らかにする必要がある。だが開口とスクリーンの間にレンズなどの光学系が挿入されている場合や光源の波面が平面波とみなせない場合はフーリエ変換法だけで詳細を明らかにすることは難しい。またフーリエ変換法は位相以外のパラメータ求める場合は適した方法ではない。

[0062] そこで本実施形態では、光路差の寄与を明らかにするため一次元フレネル回折を用いて開口の幾何学的な大きさや位置、レンズによる収差、入射波が干渉像にどのように影響するかを評価した。式（２）には近軸近似である一次元フレネル回折を用いた干渉像の形状を表す式を示す。

[数2]

$$I(x_2) = A \left| \int \int g(x_0) f(x_0) e^{i\pi \frac{(x_0-x_1)^2}{z_{01}\lambda}} e^{iW(x_1)} e^{i\pi \frac{(x_1-x_2)^2}{z_{12}\lambda}} dx_0 dx_1 \right|^2 \quad \dots(2)$$

[0063] x_0 : ダブルスリット平面における x 方向の位置を表す独立変数。
 x_1 : グレーティング平面における x 方向の位置を表す独立変数。
 x_2 : CCDアレイ上の x 方向の位置を表す独立変数。
 λ : 波長
 $I(x_2)$: CCDアレイ上の各 x_2 位置におけるCCD A/D信号強度。
 $g(x_0)$: ダブルスリット面における高調波（入射波）の波面。
 $f(x_0)$: ダブルスリットの開口関数。
 $W(x_1)$: トロイダルグレーティングによって加えられる位相。

[0064] z_{01} はダブルスリット面とグレーティング面までの距離で0.72mである。 z_{12} はグレーティング面とCCDアレイの撮像面（スクリーン面）までの距離で0.3mであり、これらは定数として扱っている。

[0065] スリットが開いている場所は透過率100%、空いていない場所は0%である。そのため開口関数 $f(x_0)$ は、理想的には開口の境界に0と1の不連続点を持つ階段関数で表される。

[0066] 実験に用いたダブルスリットは幅 $20\mu\text{m}$ の開口を持つ。集束イオンビーム（FIB: Focused Ion Beam）加工には加工誤差が存在するため、スリット幅と間隔の正確な値は、定数として扱わずに、変数として扱うこととし、式（２）から得られる干渉像の計算値が、測定によって得られた観測値（300, 302）を最もよく一致する値を採用した。またナイキスト周波数以上の高周波成分を取り除くため開口関数 $f(x_0)$ を幅 $1\mu\text{m}$ を持つ誤差関数で置き換えた。

- [0067] 高調波光源のサイズは $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下であると考えられるため、光源から 44 cm 離れたダブルスリット 150 、 152 の開口における電場強度は一樣に分布する。ファンシッター・ゼルニケの定理により、ダブルスリット開口内の高調波の空間コヒーレンスは 100% とみなせる（非特許文献32）。
- [0068] 次にスペクトル幅広がり起因する干渉像への影響を検証するため線幅の測定を行った。その結果影響は無視できるほど狭いことがわかった。線幅によるビジビリティの低下は無視できる。
- [0069] 高調波の非線形媒質4であるネオンガスに集光した基本波のポインティングと干渉像の位相を同時にモニタしたところ、明確な相関があり $0.8\text{ mrad}/\mu\text{m}$ の関係を持つことを確かめた。集光位置は最大速度 $4\text{ }\mu\text{m}/\text{min}$ でドリフトする。その場合、1測定 200 秒の測定間で 10 mrad 程度の誤差が生じる。このドリフト由来の不確定性を除去するために以下の手法でドリフトを抑制した。
- [0070] ビームポインティングの安定化のために安定化装置120が設けられる。安定化装置120は、集光光学系116における短パルスレーザ光の平行光と集光点の二箇所における短パルスレーザ光の位置をモニタし、集光光学系116の光学素子の機械的狀態を制御する。具体的には、位置検出素子PSD1、PSD2を用い平行光と集光点の合わせて2箇所で基本波S0の位置をモニタしている。そして、ミラー118とともに集光光学系116を構成する2枚のミラーホルダ124、126をピエゾアクチュエータによって制御することで2つの位置検出素子における安定化を行った。集光位置において 1×10^6 パルス平均で $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以下に集光位置を安定化した。安定化によって基本波の集光位置のドリフト由来の位相の系統誤差は 0.08 mrad 以下に抑えることができた。
- [0071] 一方でこの安定化手法では 200 マイクロ秒（ μs ）間隔で到達する隣り合うパルス間の揺れを制御することはできない。そこで 1×10^6 個の集光位置、つまり波面gの中心はある標準偏差 P_0 を持って正規分布していると仮定した。正規分布を以下の級数で近似した。ただし級数の数は最も計算コスト

の少ない9 (M=4) とした。これにより、式(2)は、以下の式(3)のように修正することができる。

[数3]

$$I(x_2) = A \sum_{m=-M}^M \exp\left(-\frac{2m^2}{M^2}\right) \left| \int \int g(x_0 + 2mP_\sigma / M) f(x_0) e^{i\pi \frac{(x_0-x_1)^2}{z_{01}\lambda}} e^{iW(x_1)} e^{i\pi \frac{(x_1-x_2)^2}{z_{12}\lambda}} dx_0 dx_1 \right|^2 \quad \dots(3)$$

[0072] 式(3)のカイ二乗検定を行うためにCCD A/D信号の統計的な不確定性を明らかにした。外乱の時定数よりも十分短いサンプリングレートでHHG光(72.8 eV)をCCDカメラで測定した。CCDのA/D信号の分散は平均信号強度に対して傾き約2の線形成分を持つ。すなわちこれは光子ショットノイズであり、その標準偏差はA/D信号強度をIとすると、式(4)となる。

[数4]

$$\sigma_{shot} = \sqrt{2I} \quad \dots(4)$$

[0073] ・暗電流由来のノイズ

CCDカメラの暗電流由来のノイズは0.0000175 A/D counts/pixel/sec程度である。200秒積算での暗電流由来のノイズは光子ショットノイズより十分小さいと考えここでは無視する。

[0074] ・読み出しノイズ

CCDカメラの各素子は読み出しノイズが存在する。50kHzの読み出し速度で一ピクセルあたりの読み出しノイズは1.21 A/D counts/pixelである。上述のように、一点あたりの積算は、ピーク強度にあたる位置を中心とする15ピクセルに対して行われ、かつ信号はバックグラウンドを差し引くことで得られることを考慮した。

[0075] 以上を考慮し各X点あたりのA/D信号強度Iの統計誤差は式(5)となる。

[数5]

$$\sigma_{stat} = \sqrt{2I + 1.21^2 \times 30} \quad \cdots(5)$$

[0076] はじめに、入射波面 g を最も単純な平面波を想定し、トロイダル面において加えられる位相を、式 (6) で仮定した。

[数6]

$$W(x_1) = -\pi x_1^2 / f\lambda \quad \cdots(6)$$

ここで f はゼロ次回折光の光軸に沿ったトロイダル面の焦点距離で 0.3 m である。カイ二乗検定を行ったところ、異なる波長で測定した自由度で規格化した χ_r^2 は 10 ~ 60 に分布することが分かった。これは統計誤差を大きく超えた不一致がモデル関数と観測値の間に存在することを意味する。

[0077] 不一致を解消するため入射波面 g とトロイダルグレーティングによる位相項 W を再度検討した。ガウシアンビームで発生した高調波の波面はガウシアンビーム (TEM00 モード) で良く表されることが報告されている (非特許文献 33, 34)。TEM00 モードの波面を表す項のうち、伝播方向に対して直交する面内の変化 x_0 に対して変化する成分は 2 次関数の形を持つ。

[0078] 波面は平面波ではなく、面内の変化 x_0 に対して式 (7) の依存性を示す。

[数7]

$$g(x_0) = \exp(-i\pi \frac{x_0^2}{R\lambda}) \quad \cdots(7)$$

高調波のウエスト位置は次数依存性を持つことが知られているため、 R を次数に依存した変数として扱った (非特許文献 33)。

[0079] 各 x_1 点でトロイダルグレーティングによる位相の変化 W が加わるとし、式 (8) で表すこととした。

[数8]

$$W_{\lambda}(x_1) = \frac{2\pi\xi(\lambda)x_1}{z_{12}\lambda} - \frac{\pi x_1^2}{F(\lambda)\lambda} \quad \dots(8)$$

[0080] 第一項はトロイダルグレーティングによって加わる波面の傾きであり、第二項はトロイダルグレーティングによって加わる波面の曲率である。 ξ （傾き）と F （曲率）は波長 λ に依存する変数として扱う。グレーティングの引き方の詳細はブラックボックス化されているためさらに高次の位相項に関する考察は本開示では行わない。

[0081] 以上の変数を、第1状態 $\phi 1$ で得られる干渉像300をよく再現するように最適化し、両方空のダブルスリットの干渉像の形状を最小二乗法により計算した結果は、図6（a）に実線で示される。計算結果と測定結果は、ダイナミックレンジで2桁以上の一致を示すことがわかる。フィッティングパラメータは（ A ， ξ ， F ， R ）及び光源のゆらぎ P_{σ} である。上記の改善で、 χ_r^2 は1.6～6.4に分布するようになった。

[0082] 次に片側のスリットにサンプル2を設置した第2状態 $\phi 2$ において得られる干渉像302を、式（2）を用いて評価した。サンプル2を設置したスリットの開口関数は電場透過率 L と位相差 θ を用いて、 $L \exp(i\theta)$ の項が乗算される。こちらもダイナミックレンジで2桁以上の一致を示すことがわかる。ただし収差及び入射波面は、第1状態 $\phi 1$ の測定および解析で得られた値を用いた。フィッティングパラメータは（ A ， L ， θ ）及び光源のゆらぎ P_{σ} である。

[0083] <系統誤差>

フィッティングモデルの改善により χ_r^2 は1.6～6.4程度に収まったが、残差の分布を調べたところ系統的な特徴が存在すること分かった。このようなランダムではない系統的な残差は系統誤差としてパラメータの不確定性に寄与する。そこで系統的な残差の二乗平均平方根＝ O_{rms} を測定量とモデルの間の系統誤差として扱った（非特許文献35）。またその分布を標準偏

差 σ_{rms} を持つ正規分布と近似した（非特許文献 36）。系統誤差から推定される位相 θ の不確定性は、

$$\Delta \theta_{sys} = 8 \text{ mrad}$$

となった。ただし本開示では求めた不確定性は全て 68% 信頼区間に相当する。統計的な不確定性 $\Delta \theta_{stat}$ の信頼区間は 68% である。全不確定性を、 $\Delta \theta_{sys}$ と $\Delta \theta_{stat}$ の二乗和の平方根とした。

[0084] 図 7 は、実験により得られた θ および L を示す図である。72.8 eV 近傍にピークを持つ明確な構造が観測されており、これはアルミニウムの L 端を示す。次に以下の式（9）より屈折率を求めることができる。

[0085] [数9]

$$\sigma = \theta \lambda / 2\pi d, \beta = -\ln(L) \lambda / 2\pi d \quad \cdots(9)$$

[0086] 酸化膜は屈折率が大きく異なるため、その存在が屈折率に大きな不確定性をもたらす。裏表合わせて 6.5 nm 存在する酸化膜が持つ位相シフトの寄与を文献値を用いて以下の式（10）で見積もった。

[0087] [数10]

$$\begin{aligned} \sigma_{Al} &= (\theta \lambda / 2\pi - \sigma_{Al_2O_3} d_{Al_2O_3}) / (d - d_{Al_2O_3}) \\ \beta_{Al} &= (-\ln(L) \lambda / 2\pi - \beta_{Al_2O_3} d_{Al_2O_3}) / (d - d_{Al_2O_3}) \end{aligned} \quad \cdots(10)$$

[0088] ここで酸化膜の屈折率を式（11）で表すとき、 $d_{Al_2O_3} = 6.5 \text{ nm}$ 、 $d = 141 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$ が得られた。

[数11]

$$N = 1 - \sigma_{Al_2O_3} + i\beta_{Al_2O_3} \quad \cdots(11)$$

[0089] 図 8 は、実験により得られた屈折率を示す図である。エラーバーには θ 及び L の不確定性に膜厚の不確定性が寄与する。図 8 には、光学定数測定装置 100 により得られたエラーバーのプロットに加えて、過去に報告されている屈折率が示される。実部虚部共に L 端の周りのエネルギーで Birken（非特

許文献7)と一致したが、CXRO (The Center for X-ray Optics) のデータベースとChang (非特許文献8)の結果とは一致しなかった。またL端以下のエネルギーにおいてはGullikson (非特許文献9)による虚部の結果とエラーバーの範囲で一致した。Changの結果が異なるのは分散測定の不定性によるものである。

[0090] 図9は、 A_I / Z_r 多層膜ミラーの反射率の計算結果を示す図である。 Z_r については、CXROの値を用い、 A_I については、光学定数測定装置100により得られた A_I の光学定数と、CXROの値を用いている。今回得られた光学定数で多層膜ミラーを設計すると、 $5 \pm 1\%$ 程度、有意に異なることが確かめられた。

[0091] 以上、実施形態に係る光学定数測定装置100について説明した。

[0092] まとめると、高次高調波のダブルスリット干渉像をモデル化することによって、モデル関数のパラメータとして複素屈折率を定量的に評価した。観測値の統計的な不確定量を実測によって定量化し、ダブルスリットの設計を複素屈折率の不確定量が最も小さくなるよう最適化した。

[0093] 系統誤差の要因を調査し、それらが複素屈折率に与える影響を評価した。系統誤差主要因であるビームポインティングのドリフトを最小化するための実験系を構築した。

[0094] $63 \sim 78 \text{ eV}$ の範囲におけるアルミニウムの屈折率の測定結果は実部虚部共にL端の周りのエネルギーでBirkenと一致したが、CXROとChangの結果とは一致しなかった。またL端以下のエネルギーにおいてはGulliksonによる虚部の結果と一致した。

[0095] EUVの屈折率評価として初めて定量的に誤差を評価した。干渉像の形状解析から推定された位相シフトの検出エラーはL端以下では 9 mrad 、L端より高エネルギーでは 13 mrad 程度となった。高次高調波ベースのダブルスリット干渉計としては2桁精度が向上した。

[0096] 複素屈折率分散の決定精度が2桁向上したことで多層膜ミラーの反射率が $\pm 1\%$ 以内で評価できるようになった。

- [0097] E U V 領域の光学素子設計の精度を満たすテーブルトップの光学定数測定装置ができたことで、様々な光学材料の探索を容易に行うことができるようになった。
- [0098] この成果により、E U V リソグラフィーの光学素子のうち光位相の制御が重要となるマスク素子などの材料探索、天体観測分野におけるE U V イメージング用の多層膜反射ミラーの材料などの応用が望める。
- [0099] 以上、本発明について、実施の形態をもとに説明した。この実施の形態は例示であり、それらの各構成要素や各処理プロセスの組み合わせにいろいろな変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。以下、こうした変形例について説明する。
- [0100] 上の説明では、第1干渉像300とのフィッティングから、いくつかのパラメータ (A , ξ , F , R , P_o) を確定させた後に、第2干渉像302とのフィッティングにより、(A , L , θ , P_o) を計算するという二段階の処理を行ったが、計算手順はこれに限定されない。式(2)にもとづいて計算される干渉像が、測定で得られた2つの干渉像300, 302の両方に対して精度良くフィッティングするように、モデルを記述するすべてのパラメータ (A , ξ , F , R , P_o , L , θ) を一斉に最適化してもよい。
- [0101] サンプルホルダー160を再利用する場合、2回目以降の測定では、第1干渉像300の測定を省略し、第2干渉像302のみを測定し、サンプルの光学定数を計算してもよい。
- [0102] 光学定数測定装置100のモデル(関数)の決め方は、実施形態で説明したそれに限定されず、波面、ダブルスリットの開口、回折格子を記述する関数 $g(\xi)$, $f(\xi)$, $W(\rho)$ は、実際の測定装置を最も精度よく記述できるように定めればよい。

産業上の利用可能性

- [0103] 本発明は、複素屈折率などの光学定数の測定技術に関する。

符号の説明

- [0104] 2…サンプル、4…非線形媒質、100…光学定数測定装置、104…ガス

ノズル、１１０…コヒーレント光源、１１２…主光源、１１６…集光光学系、１２０…安定化装置、１３０…分光器、１３２…回折格子、１３４…イメージセンサ、１３６…入射スリット、１３８…フィルタ、１５０…第１ダブルスリット、１５２…第２ダブルスリット、１６０…サンプルホルダ、２００…演算処理装置。

請求の範囲

- [請求項1] 短パルスレーザー光を非線形媒質に照射して得られる高次高調波を含むコヒーレント光を出力するコヒーレント光源と、
- 前記コヒーレント光を回折する回折格子および前記回折格子により回折された光を撮像するイメージセンサを含む分光器と、
- 第1方向に離間する開口ペアを有し、第1状態において、前記コヒーレント光源と前記分光器の入射スリットの間の所定位置に配置される第1ダブルスリットと、
- 前記第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、第2状態において、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した状態で、前記所定位置に前記第1ダブルスリットと置換して配置される第2ダブルスリットと、
- 前記第1状態において、前記コヒーレント光の前記高調波が前記イメージセンサに形成する第1干渉像と、前記第2状態において、前記高調波が前記イメージセンサに形成する第2干渉像と、にもとづいて、前記サンプルの光学定数を計算する演算処理装置と、
- を備えることを特徴とする光学定数測定装置。
- [請求項2] 前記光学定数測定装置がパラメータを用いてモデル化されており、
- 前記演算処理装置は、前記光学定数測定装置のモデルにもとづき、前記第1状態および前記第2状態において前記イメージセンサ上に形成される強度分布を、一次元フレネル回折の式により計算し、
- 計算された前記強度分布が、前記第1干渉像および前記第2干渉像に近づくように、前記モデルのパラメータおよび前記サンプルの光学定数を取得することを特徴とする請求項1に記載の光学定数測定装置。
- [請求項3] 前記第1ダブルスリットおよび前記第2ダブルスリットの開口は、誤差関数を用いてモデリングされることを特徴とする請求項2に記載の光学定数測定装置。

- [請求項4] 前記第1干渉像および前記第2干渉像は、前記コヒーレント光の複数の照射の積算として得られるものであり、
- 前記第1ダブルスリットおよび前記第2ダブルスリットへの入射波の波面の関数は、その中心位置が、正規分布でばらついているものとして扱われることを特徴とする請求項2または3に記載の光学定数測定装置。
- [請求項5] 前記第1ダブルスリットと前記第2ダブルスリットは、前記第1方向と垂直な第2方向に連続して形成され、
- 前記光学定数測定装置は、
- 前記第1ダブルスリットおよび前記第2ダブルスリットを、前記第2方向にシフトさせるステージをさらに備えることを特徴とする請求項1から4のいずれかに記載の光学定数測定装置。
- [請求項6] 前記コヒーレント光源は、光パラメトリック増幅器を含み、前記短パルスレーザ光の波長が可変であることを特徴とする請求項1から5のいずれかに記載の光学定数測定装置。
- [請求項7] 前記コヒーレント光源は、
- 前記短パルスレーザ光を発生する主光源と、
- 前記非線形媒質であるガスを噴射するガスノズルと、
- 前記短パルスレーザ光を前記ガスに集光する集光光学系と、
- 前記集光光学系における前記短パルスレーザ光の平行光と集光点の二箇所における前記短パルスレーザ光の位置をモニタし、前記集光光学系の光学素子の機械的状态を制御する安定化装置と、
- を含むことを特徴とする請求項1から6のいずれかに記載の屈折測定装置。
- [請求項8] 短パルスレーザ光を非線形媒質に照射し、高次高調波を含むコヒーレント光を生成するステップと、
- 前記コヒーレント光を、第1方向に離間する開口ペアを有する第1ダブルスリットに通過させ、第1干渉像を測定するステップと、

前記コヒーレント光を、前記第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した第2ダブルスリットを通過させ、第2干渉像を測定するステップと、

前記第1干渉像と前記第2干渉像にもとづいて、前記サンプルの光学定数を計算するステップと、

を備えることを特徴とする屈折率の測定方法。

[請求項9]

測定系により得られる第1干渉像および第2干渉像にもとづいてサンプルの光学定数を計算する方法であって、

前記測定系は、

短パルスレーザ光を非線形媒質に照射して得られる高次高調波を含むコヒーレント光を出力するコヒーレント光源と、

前記コヒーレント光を回折する回折格子および前記回折格子により回折された光を撮像するイメージセンサを含む分光器と、

第1方向に離間する開口ペアを有し、第1状態において、前記コヒーレント光源と前記分光器の入射スリットの間の所定位置に配置される第1ダブルスリットと、

前記第1ダブルスリットのレプリカである開口ペアを有し、第2状態において、当該開口ペアの一方の開口にサンプルを保持した状態で、前記所定位置に前記第1ダブルスリットと置換して配置される第2ダブルスリットと、

を備え、

前記第1干渉像は、前記第1状態において、前記コヒーレント光の前記高調波が前記イメージセンサに形成されるものであり、

前記第2干渉像は、前記第2状態において、前記高調波が前記イメージセンサに形成されるものであり、

前記計算方法は、

前記第1状態および前記第2状態における前記測定系のモデルを規定するステップと、

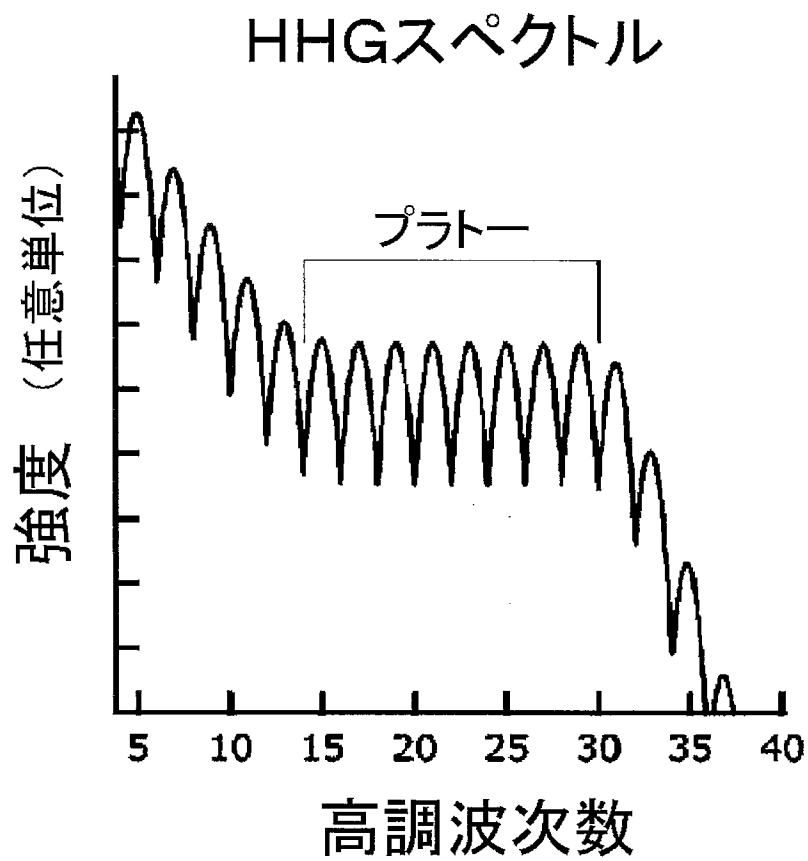
前記第 1 状態の前記測定系のモデルが形成する第 1 回折パターンを一次元フレネル回折の式にもとづいて計算するステップと、

前記第 2 状態の前記測定系のモデルが形成する第 2 回折パターンを一次元フレネル回折の式にもとづいて計算するステップと、

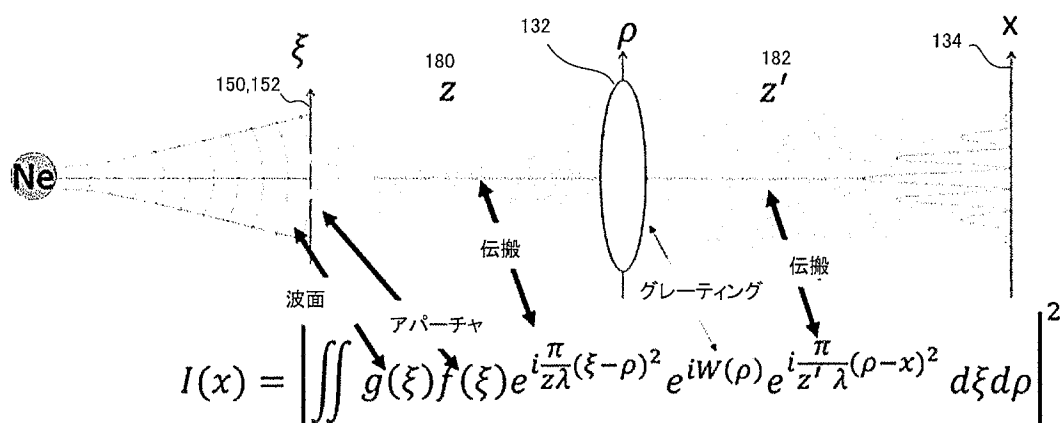
前記第 1 回折パターンが前記第 1 干渉像に近づき、前記第 2 回折パターンが前記第 2 干渉像に近づくように、前記測定系のモデルのパラメータおよび前記サンプルの光学定数を計算するステップと、

を備えることを特徴とする方法。

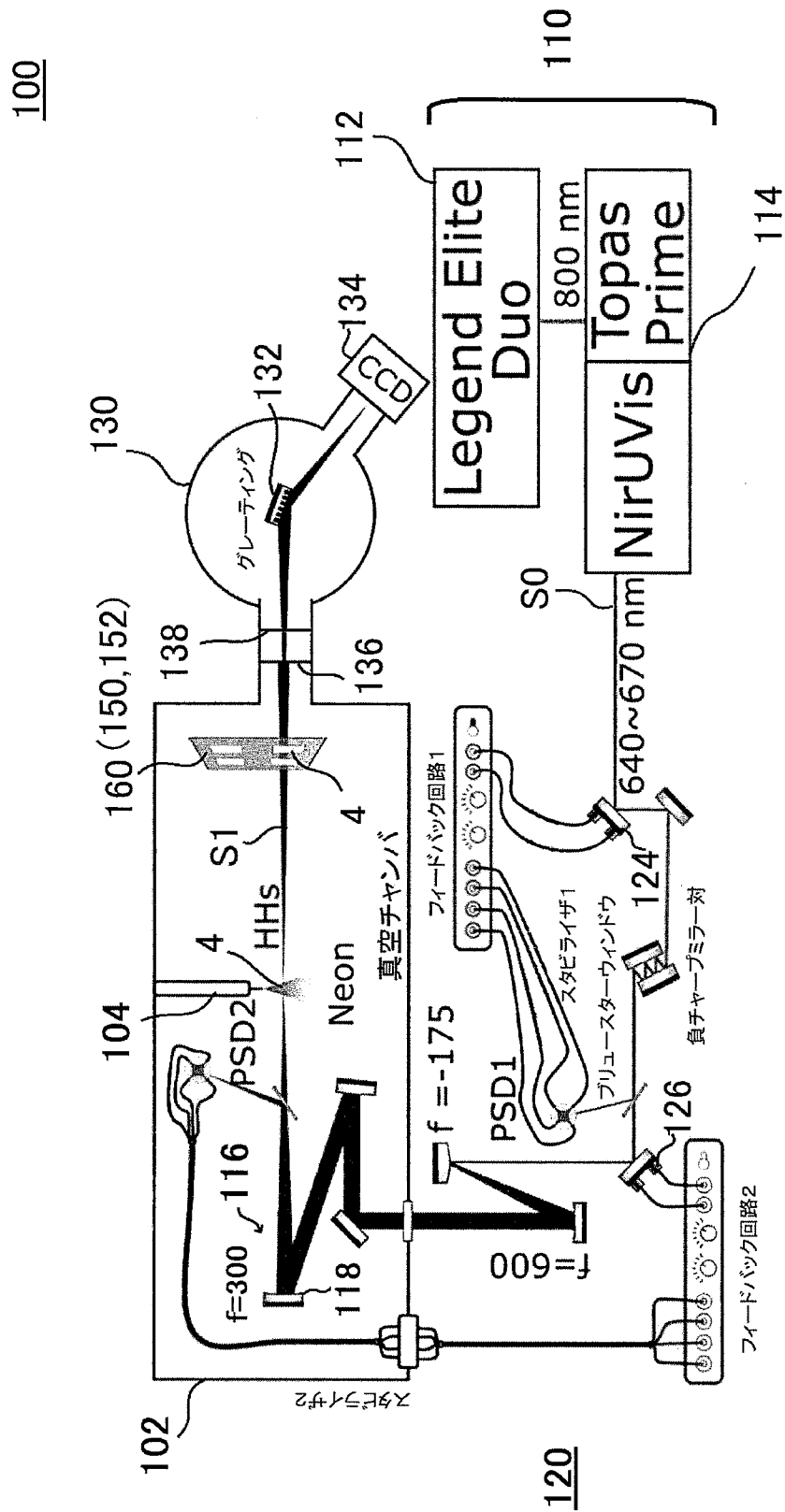
[図 3]



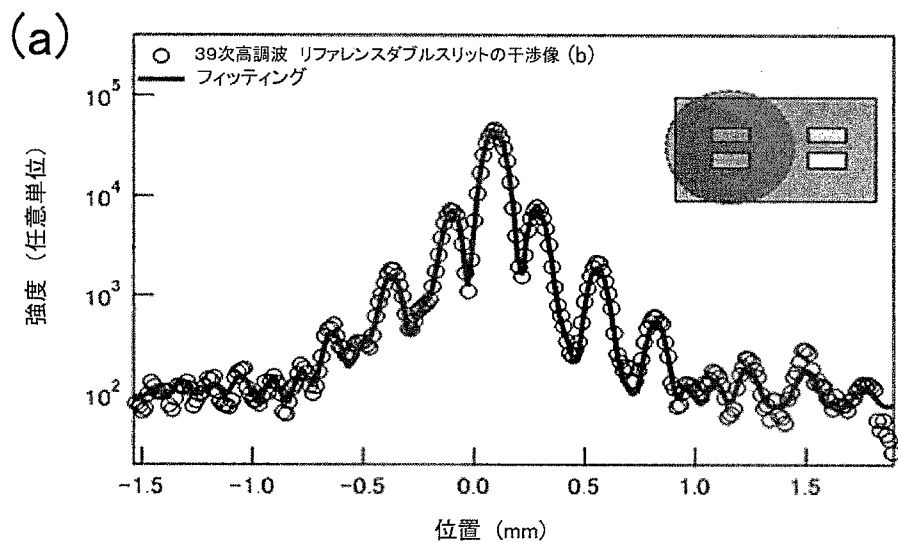
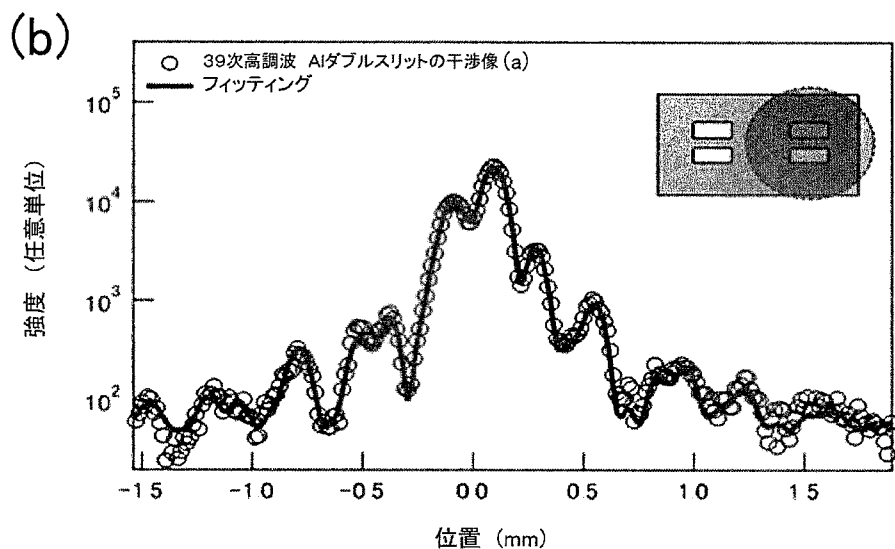
[図 4]



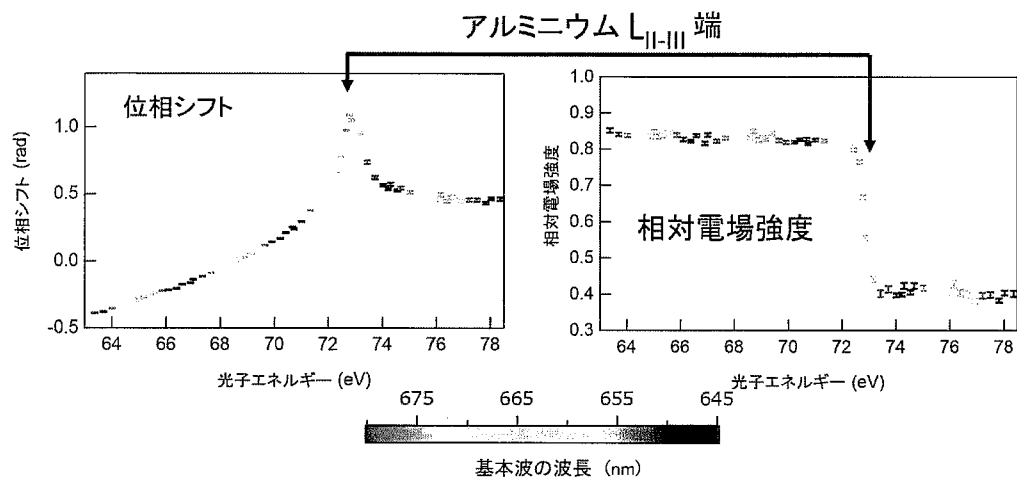
[図 5]



[図 6]

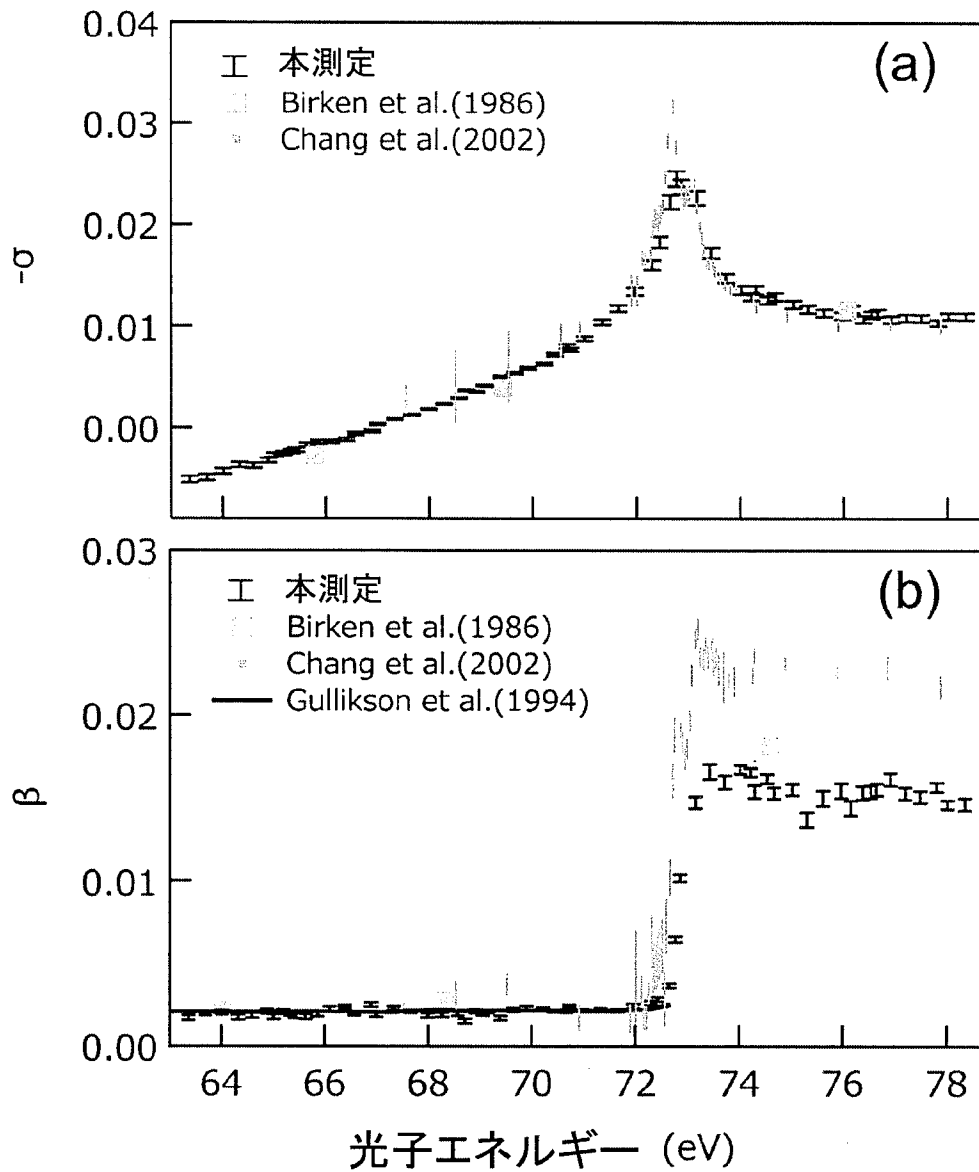
300302

[図 7]



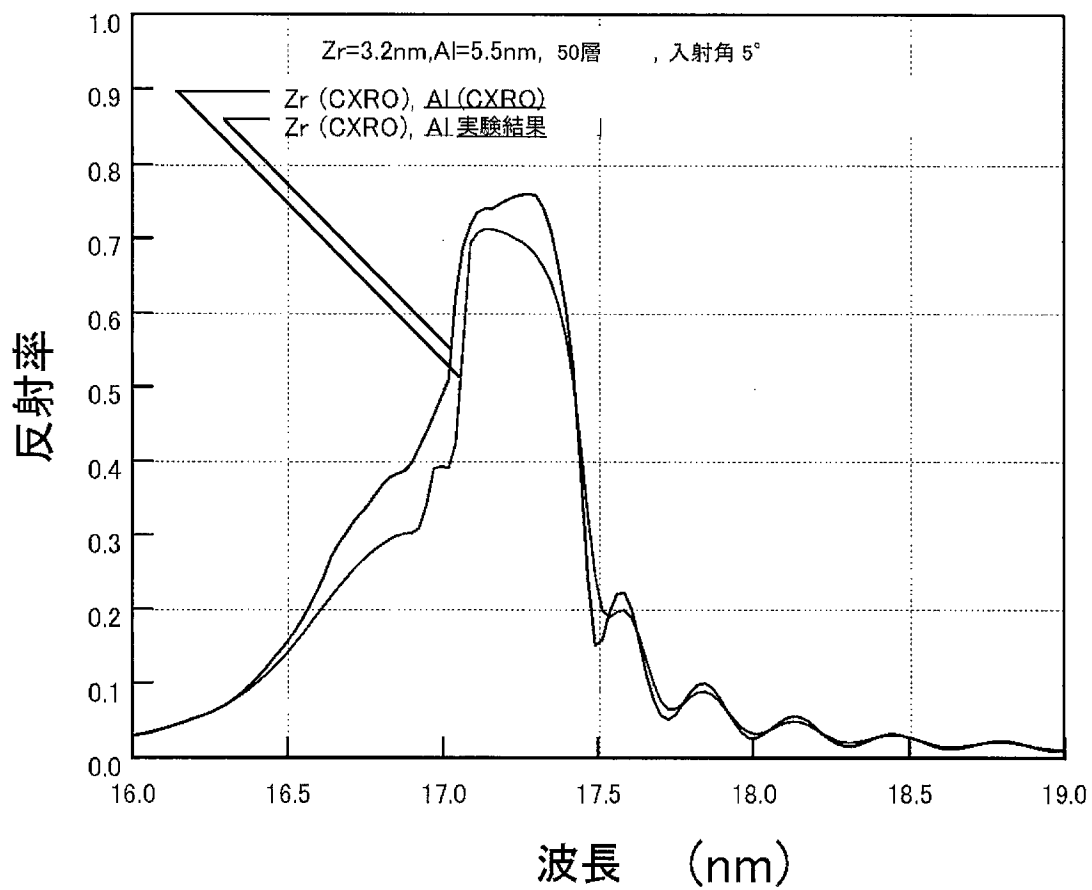
[図 8]

$$N = 1 - \sigma + i\beta$$



[図 9]

Al/Zr 多層膜ミラーの計算



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/030878

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G01N 23/02 (2006.01) i; G01N 21/41 (2006.01) i
FI: G01N23/02; G01N21/41

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G01N23/00-23/2276; G01N21/41

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	永久保祐紀, 高次高調波を用いた時間分解位相敏感屈折率計測法の開発 (要旨), 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻の学位論文, 東京大学学術機関リポジトリ, 23 March 2017, http://doi.org/10.15083/00075554 , pp. 1-3, (NAGAKUBO, Yuki, "Development of a method for time-resolved phase-sensitive detection of refractive indices using high-order harmonics(summary)", Dissertation of Department of Physics, Graduate School of Science, University of Tokyo, UTokyo Repository)	1-9
Y	CHANG, Chang, "Direct measurement of index of refraction in the extreme-ultraviolet wavelength region with a novel interferometer", OPTICS LETTERS, 15 June 2002, vol. 27, no. 12, pp. 1028-1030, column "abstract", page 1028, right column, line 23 to page 1029, left column, line 17, fig. 1	1-9



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 October 2020 (19.10.2020)

Date of mailing of the international search report
02 November 2020 (02.11.2020)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/030878

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	永久保祐紀, 高次高調波を用いた時間分解位相敏感屈折率計測法の開発 (本文), 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻の学位論文, 東京大学学術機関リポジトリ, 23 March 2017, pp. 1-131, 169-176, http://doi.org/10.15083/00075554 , table of contents, list of figures, abstract, 2.2 Configuration of experimental equipment in this study, chapter 6 Summary and future prospects, (NAGAKUBO, Yuki, "Development of a method for time-resolved phase-sensitive detection of refractive indices using high-order harmonics(text)", Dissertation Department of Physics, Graduate School of Science, University of Tokyo, UTokyo Repository)	1-9
A	WILSON, Lucy A., "Double slit interferometry to measure the EUV refractive indices of solids using high harmonics", APPLIED OPTICS, 20 April 2012, vol. 51, no. 12, pp. 2057-2061, entire text, all drawings	1-9
A	US 2017/0281102 A1 (KEN, Weng-Dah) 05 October 2017 (2017-10-05) entire text, all drawings	1-9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/030878

Patent Documents
referred in the
ReportPublication
Date

Patent Family

Publication
Date

US 2017/0281102 A1

05 Oct. 2017

WO 2017/167294 A1

EP 3436769 A1

CN 107709922 A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） G01N 23/02(2006.01)i; G01N 21/41(2006.01)i FI: G01N23/02; G01N21/41														
B. 調査を行った分野														
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） G01N23/00-23/2276; G01N21/41														
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2020年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2020年	日本国実用新案登録公報	1996-2020年	日本国登録実用新案公報	1994-2020年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2020年													
日本国実用新案登録公報	1996-2020年													
日本国登録実用新案公報	1994-2020年													
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） JSTPlus/JST7580 (JDreamIII)														
C. 関連すると認められる文献														
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
Y	永久保祐紀, 高次高調波を用いた時間分解位相敏感屈折率計測法の開発（要旨）, 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻の学位論文, 東京大学学術機関リポジトリ, 2017.03.23, http://doi.org/10.15083/00075554 第1頁-第3頁	1-9												
Y	CHANG, Chang, Direct measurement of index of refraction in the extreme-ultraviolet wavelength region with a novel interferometer, OPTICS LETTERS, 2002.06.15, Vol.27 No.12, pp.1028-1030 アブストラクト欄, 第1028頁右欄第23行-第1029頁左欄第17行、図1	1-9												
Y	永久保祐紀, 高次高調波を用いた時間分解位相敏感屈折率計測法の開発（本文）, 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻の学位論文, 東京大学学術機関リポジトリ, 2017.03.23, pp.1-131, 169-176, http://doi.org/10.15083/00075554 目次, 図目次, Abstract, 2.2 本研究における実験装置の構成, 第6章 まとめと今後の展望	1-9												
A	WILSON, Lucy A., Double slit interferometry to measure the EUV refractive indices of solids using high harmonics, APPLIED OPTICS, 2012.04.20, Vol.51 No.12, pp.2057-2061 全文、全図	1-9												
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</td> </tr> <tr> <td>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの</td> <td>“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの</td> <td>“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの</td> </tr> <tr> <td>“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの	“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの	“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの	“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献	“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献		“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	
* 引用文献のカテゴリー	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの													
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの													
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの													
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献														
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献														
国際調査を完了した日 19.10.2020	国際調査報告の発送日 02.11.2020													
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 田中 洋介 2W 3009 電話番号 03-3581-1101 内線 3258													

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	US 2017/0281102 A1 (KEN, Weng-Dah) 05.10.2017 (2017 - 10 - 05) 全文、全図	1-9

国際出願番号
PCT/JP2020/030878

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
US	2017/0281102	A1	05.10.2017	WO	2017/167294	A1	
				EP	3436769	A1	
				CN	107709922	A	