



Sergiy Yulin



Torsten Feigl



Nicolas Benoit



Marko Perske



Elena Taracheva



Sophie Schröder



Viatcheslav Nesterenko



Norbert Kaiser

## Einleitung

Die Optikentwicklung fokussiert sich seit einigen Jahren zunehmend auf Optikkomponenten für immer kürzere Wellenlängen  $\lambda$ . Getriggert wird dieser Trend zum einen von der Forderung nach Erhöhung des Auflösungsvermögens optischer Systeme und zum anderen von der zunehmenden Verfügbarkeit leistungsfähiger Strahlquellen im extrem ultravioletten (EUV) und weichen Röntgenbereich. Herausragende Anwendungen von Optiken im genannten Spektralbereich sind unter anderem die EUV-Lithographie ( $\lambda = 13,5$  nm), Mikroskopie im »Wasserfenster« ( $\lambda = 2,3$  nm ... 4,4 nm), Astronomie ( $\lambda = 15$  nm ... 100 nm), Spektroskopie, Plasmadiagnostik, Röntgenlaser und zukünftig XFELs /1/.

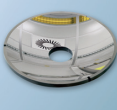
Sowohl das  $\lambda/4$ -Schichtsystem als auch das ideale Bragg-Gitter sind bekannte Design-Ansätze um durch konstruktive Interferenz eine möglichst hohe Reflexion an Grenzflächen zu erhalten. Hierbei führt das  $\lambda/4$ -Schichtsystem für nichtabsorbierende Materialien zu einer maximalen Reflexion bei minimaler Schichtanzahl. Allerdings ist wegen der im EUV und weichen Röntgenbereich nicht vernachlässigbaren Absorption die hier erreichbare Reflexion weit geringer als bei HR-Systemen im visuellen und infraroten Spektralbereich. Interferenz-Schichtsysteme für den EUV und weichen Röntgenbereich werden oft als Multilayerspiegel bezeichnet und durch Abscheidung alternierender Schichten unterschiedlicher Brechzahlen hergestellt. Die optischen Eigenschaften werden hauptsächlich durch die Wahl geeigneter Materialien bestimmt, die möglichst ideale Grenzflächen bilden sollen. Eine herausragende Eigenschaft von Multilayern ist ihre Abscheidbarkeit

auf gekrümmten Substraten, wodurch verschiedenste optische sowie spektrale Anforderungen realisiert werden können.

Während der vergangenen zehn Jahre wurden am Fraunhofer-Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik IOF Jena zahlreiche hochreflektierende Multilayerspiegel für Anwendungen im EUV und weichen Röntgenbereich entwickelt und optimiert (Abb. 1). Voraussetzungen hierfür sind ein grundlegendes Verständnis von Schichtwachstumsprozessen, die Nutzung neuer Designansätze zur Minimierung von Rauheit und Interdiffusion an den Schichtgrenzflächen sowie die Weiterentwicklung verschiedener Beschichtungstechnologien. Im Folgenden soll der erreichte Stand der Entwicklung hochreflektierender Multilayerspiegel für verschiedenste Anwendungen in einem weiten Spektralbereich im EUV und weichen Röntgenbereich am Fraunhofer IOF Jena dargestellt werden.

## Spektralbereich von 40 nm bis 120 nm

Der Spektralbereich von 40 nm bis 120 nm ist wegen seiner zahlreichen Emissionslinien von Himmelskörpern für astrophysikalische Anwendungen interessant. Aluminiumschichten mit einer schützenden Deckschicht aus Magnesiumfluorid ( $MgF_2$ ) und/oder Lithiumfluorid (LiF) erreichen hohe theoretische Reflexionen von bis zu 90 % jenseits der Absorptionskanten von  $MgF_2$  bei 115 nm bzw. LiF bei 105 nm. Dicke Einzelschichten aus Silizium (Si), Siliziumkarbid ( $SiC$ ) und Borkarbid ( $B_4C$ ) können ebenfalls als Breitbandreflektoren im Spektralbereich von 50 nm bis 120 nm eingesetzt werden.



## Introduction

The demand to enhance optical resolution has pushed the search for technological innovations and improvements. Induced mainly by this aim, optics development in recent years has been focused on components for electromagnetic radiation with increasingly shorter wavelengths  $\lambda$ . The good prospects of extreme ultraviolet radiation and soft X-rays (EUV/soft X-rays) to be applied in next generation lithography systems ( $\lambda = 13.5$  nm), microscopy in the “water window” ( $\lambda = 2.3$  nm – 4.4 nm), astronomy ( $\lambda = 15$  nm – 100 nm), spectroscopy, plasma diagnostics and EUV/soft X-ray laser research have led to considerable progress in the development of different sources and reflective optics for this spectral range [1].

The quarter-wave stack and the ideal Bragg crystal are two well-known geometrical designs using constructive interference phenomena to obtain high reflectance. For the case when absorption can be neglected for both materials, the quarter wave stack can provide maximum reflectance with a minimum number of layers. In the EUV/soft X-ray range, absorption is always present and some energy is dissipated inside the multilayer stack; therefore the ideal quarter-wave stack design cannot be as effective as it is in the visible range. Multilayer interference coatings for operation in EUV/soft X-ray range, often referred to as multilayer mirrors, are prepared by depositing alternating nanometer layers of two materials of different refractive index that form long-term stable interfaces. The optical performance of multilayer interference mirrors is mainly optimized by the selection of suitable materials that form abrupt and smooth interfaces. The great advantage of multilayer mirrors

is that they can be applied to curved substrates for use in different imaging applications and simultaneously provide a well-defined spectral bandpass.

Over the last couple of years remarkable progress (Fig. 1) has been made in the development and improvement of high-reflectance multilayer mirrors for the EUV/soft X-ray spectral region at Fraunhofer Institute for Applied Optics and Precision Engineering IOF. The progress is associated with deep understanding of the multilayer growth mechanisms, application of novel interface-engineered technologies for minimization of interface defects in multilayer stack and intensive development of modern deposition techniques. These advanced high-reflectance multilayer mirrors deposited on curved substrates are believed to satisfy today's demands in various application fields. The main aim of this article is to show current state and prospects of near normal - incidence EUV/soft X-ray multilayer technology at the Fraunhofer IOF.

## Spectral range from 40 nm to 120 nm

The spectral range from 40 nm to 120 nm includes many important spectral lines for astrophysics, solar physics and atmospheric physics. Aluminum films with a protective overcoating of magnesium fluoride ( $\text{MgF}_2$ ) or/and lithium fluoride (LiF) provide a high theoretical reflectance (up to 90 %) down to the absorption cutoffs of 115 nm for  $\text{MgF}_2$  and 105 nm for LiF. The single silicon (Si), silicon carbide (SiC) and boron carbide ( $\text{B}_4\text{C}$ ) films can also be successfully used as broadband reflectors in the spectral range from 50 nm to 120 nm.

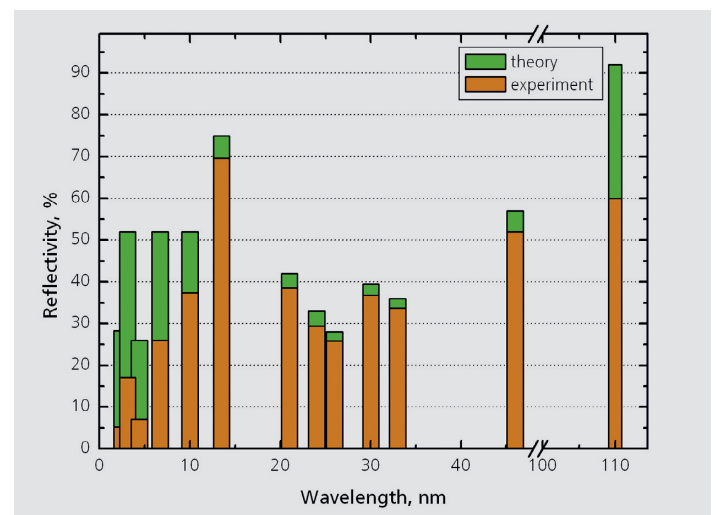


Abb. 1: Vergleich von theoretischer und gemessener Reflexion von Multilayerspiegeln in einem Spektralbereich von 2 nm bis 110 nm.

Fig. 1: Comparison of theoretical and measured reflectance in the spectral range from 2 nm to 110 nm.

Abbildung 2 zeigt das optische Spektralverhalten von Al/LiF, Al/LiF/MgF<sub>2</sub> und Si-Schichtsystemen, die für eine maximale Reflexion bei einer Wellenlänge von 110 nm und einem Einfallswinkel von 45° optimiert wurden. Für ein Al/LiF/MgF<sub>2</sub>-Schichtsystem wurde eine Reflexion von 60 % erreicht /2/. Scandium/Silizium (Sc/Si) gilt als die optimale Materialpaarung für hochreflektierende Multilayerspiegel im Wellenlängenbereich von 35 nm bis 50 nm. Bisher wurde eine maximale Reflexion von R = 52 % mit einer Bandbreite von FWHM = 4.6 nm bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 46,0$  nm gemessen (Abb. 3). Wegen der hohen Absorption in diesem Wellenlängenbereich beträgt die Anzahl der Schichtperioden nur N = 20. Sowohl Reflexion

als auch thermische Stabilität können durch Minimierung von Interdiffusionsprozessen an den Schichtgrenzflächen erhöht werden. Dies wurde durch den Einsatz ultradünner Barrierschichten einer Dicke von  $d = 0,5$  nm ...  $0,7$  nm erreicht /3/.

### Spektralbereich von 13 nm bis 35 nm

Multilayerspiegel auf Silizium-Basis, ein Material mit geringer Absorption bei Wellenlängen jenseits der Si L-Absorptionskante bei  $\lambda = 12,4$  nm, werden vor allem bei Kollektor- und Abbildungsoptiken für die EUV-Lithographie (EUVL) eingesetzt.

So wird die derzeitige technologische Ausreizung physikalischer Grenzen von Mo/Si Multilayern für 13,5 nm durch die extremen Anforderungen an EUVL-Optiken motiviert. Die optischen Eigenschaften von Mo/Si Multilayern stehen in direktem Zusammenhang zur Struktur der Grenzflächen: Die Verbreiterung der Grenzflächen durch Interdiffusionsprozesse und Rauheitsentwicklungen tragen signifikant zu einer Reflexionsminderung bei (Abb. 4). Durch Wahl geeigneter Barrierschichtmaterialien mit nachfolgender Interdiffusionsminimierung wurde eine maximale Reflexion von 69,6 % erreicht (Abb. 5).

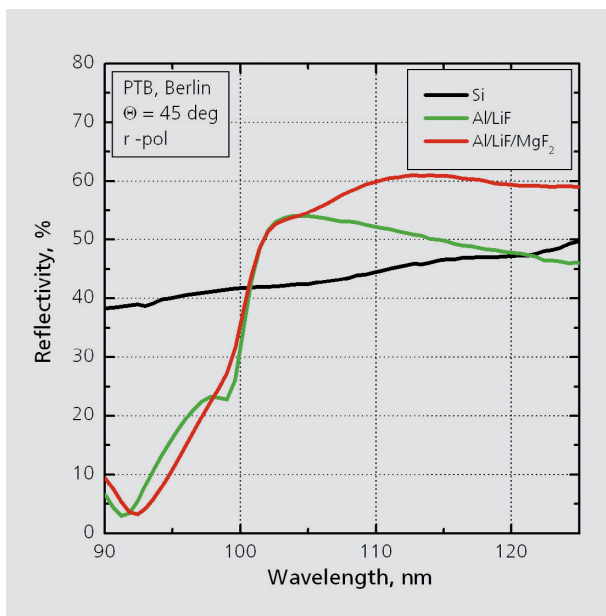


Abb. 2: Reflexion von Al/LiF, Al/LiF/MgF<sub>2</sub> und Si in einem Spektralbereich von 90 nm bis 125 nm.

Fig. 2: Reflectance of Al/LiF, Al/LiF/MgF<sub>2</sub> and Si coatings in the spectral range from 90 nm to 125 nm.

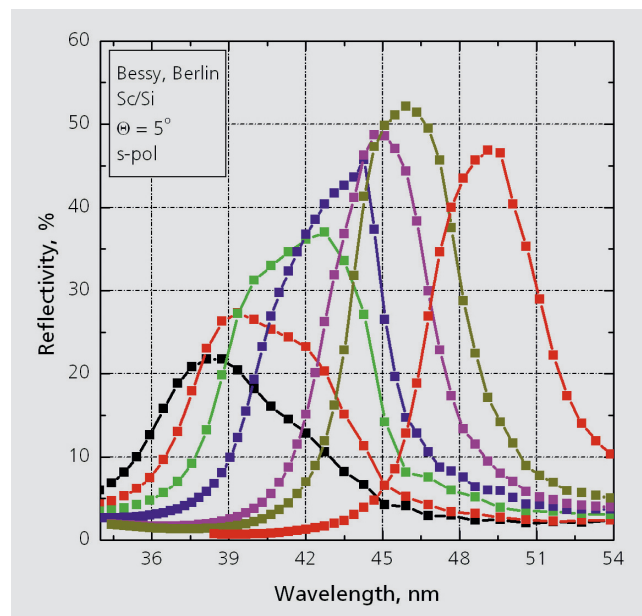


Abb. 3: Reflexion von Sc/Si Multilayerspiegeln für verschiedene Wellenlängen in einem Spektralbereich von 36 nm bis 54 nm.

Fig. 3: Reflectance of Sc/Si multilayer mirrors designed at different wavelengths in the spectral range from 36 nm to 54 nm.

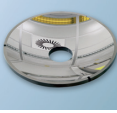


Figure 2 shows the experimental optical performances of Al/LiF, Al/LiF/MgF<sub>2</sub> and Si coatings optimized for maximum reflectance at the wavelength of 110 nm and operated at the incidence angle of 45 degrees. The maximum reflectance of 60 % was achieved on Al/LiF/MgF<sub>2</sub> coatings /2/.

The Sc/Si material couple is a promising candidate for high-reflectance normal incidence multilayer coatings in the wavelength range from 35 nm to 50 nm. Maximum experimental reflectance of R = 52 % with FWHM = 4.6 nm at  $\lambda = 46.0$  nm is achieved by Sc/Si mirrors (Fig. 3). Due to high absorption in this spectral range, the required number of bilayers (N) in multilayer design is about 20. The

reflective properties and thermal resistance of Sc/Si multilayer mirrors can be enhanced by reduction of interdiffusion processes on interfaces. This could be accomplished by the introduction of super-thin (0.5 nm–0.7 nm) diffusion barriers between the scandium and silicon layers /3/.

### Spectral range from 13 nm to 35 nm

Multilayer structures that contain silicon in particular, a material that has relatively low absorption at wavelengths longer than the Si L-absorption edge ( $\lambda = 12.4$  nm), have found broad application in optics for EUV

lithography (EUVL), solar physics and plasma physics. Nowadays the optical improvement of Mo/Si multilayer mirrors for the wavelength of 13.5 nm is mainly stimulated by EUVL requirements. The reflective properties of Mo/Si multilayers are directly correlated to the structure of the interface; broadening of interface due to interdiffusion processes and roughness development (Fig. 4) significantly reduces the reflective properties. The maximum reflectance of 69.6 % is achieved through minimization of interdiffusion intermixing by the use of diffusion barriers (Fig. 5).

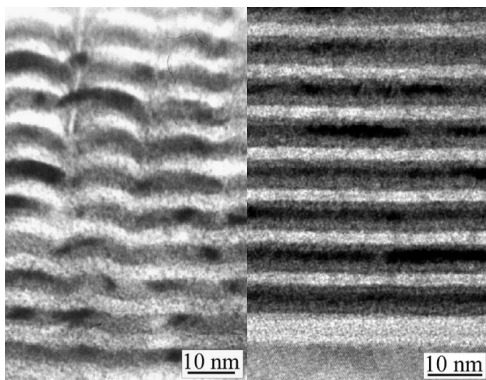


Abb. 4: Grenzflächenrauheit (links) und Interdiffusion (rechts) in Mo/Si Multilayern.

Fig. 4: Interface roughness (left) and diffusion intermixing (right) in Mo/Si multilayers.

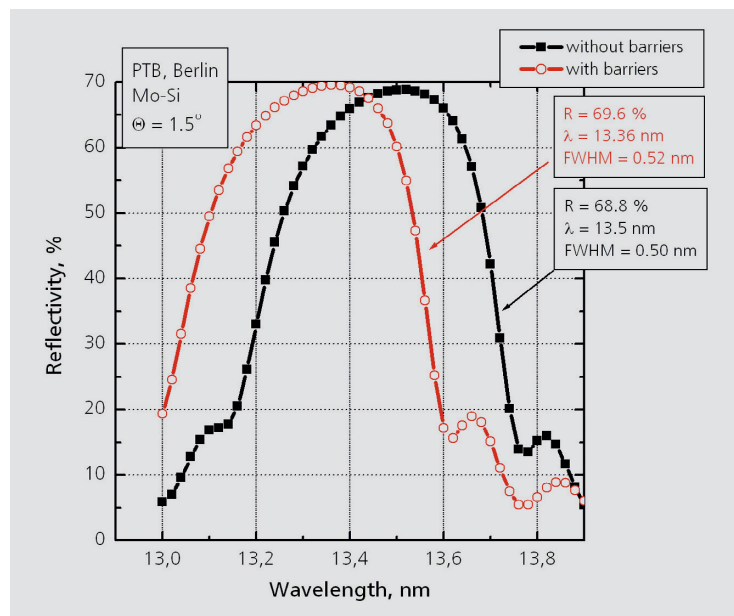


Abb. 5: Reflexion von Mo/Si ohne und mit Barrierschichten für EUVL.

Fig. 5: Reflectance of standard and interface-engineered Mo/Si multilayer mirrors for EUVL.



Abbildung 6 zeigt die maximal gemessenen Reflexionen optimierter Mo/Si Multilayerspiegel im Spektralbereich 13,5 nm ... 34,0 nm. Durch Erweiterung des Standard-Mo/Si-Designs zu einem Dreischichtsystem wurde eine Reflexionserhöhung im Bereich 25 nm ... 35 nm erreicht (Abb. 7). Neben höchstmöglicher Reflexion von Mo/Si Multilayerspiegeln ist deren Stabilität gegenüber thermischer sowie EUV-Strahlenbelastung von großem praktischen Interesse /4/.

### Spektralbereich von 6 nm bis 12 nm

Für Wellenlängen unterhalb der Si L-Absorptionskante werden gegenwärtig zahlreiche hocheffiziente Multilayersysteme entwickelt. Anwendungen sind hierbei Optiken für Freielektronen-Röntgenlaser (XFEL) und

Plasmaphysik. Wegen ihrer optischen Konstanten werden gegenwärtig vor allem Multilayer auf Basis von Bor-Verbindungen in einem Wellenlängenbereich von 6,7 nm ... 11 nm eingesetzt. Wie in Abb. 8 dargestellt, können mit B<sub>4</sub>C-Multilayerspiegeln Reflexionen von 10,2 % (N = 80) bzw. 26 % (N = 200) erreicht werden.

Die typische Bandbreite hochreflektierender B<sub>4</sub>C-Multilayerspiegel mit N = 200 beträgt FWHM ~ 0,04 nm. Eine Reflexionserhöhung ist auch hier durch den Einsatz ausgewählter Interdiffusionsbarriereschichten möglich. Für eine Wellenlänge von 10,0 nm wurden Reflexionen von R = 37,4 % bei einem Einfallswinkel von 1,5° bzw. 43,8 % bei 45° gemessen (Abb. 9).

### Spektralbereich von 2,5 nm bis 5 nm

Der Spektralbereich des sogenannten Wasserfensters erstreckt sich zwischen den K-Absorptionskanten von Sauerstoff bei  $\lambda = 2,33$  nm und Kohlenstoff bei  $\lambda = 4,37$  nm und ist besonders für die Röntgenmikroskopie von Interesse. Während der vergangenen Jahre wurden hochreflektierende Multilayerspiegel auf Basis von Scandium (Sc) sowie Titan (Ti) und Vanadium (V) entwickelt. Die optischen Eigenschaften von Multilayerspiegeln für den weichen Röntgenbereich werden vor allem von ihrer Grenzflächenstruktur bestimmt.

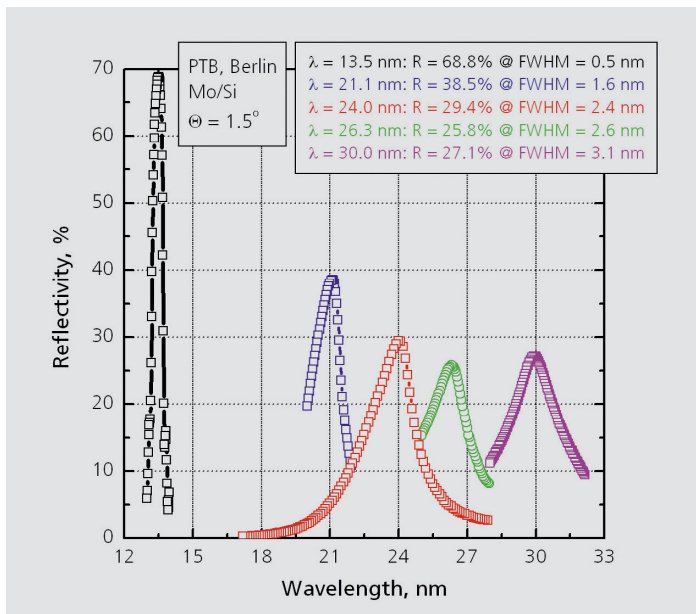


Abb. 6: Reflexion von Mo/Si im Spektralbereich von 13 nm bis 33 nm.

Fig. 6: Reflectance of Mo/Si multilayer mirrors in the spectral range from 13 nm to 33 nm.

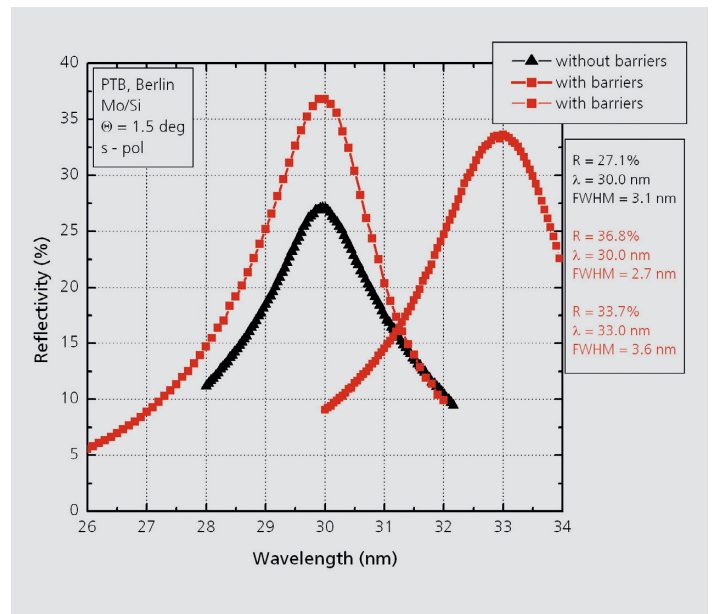
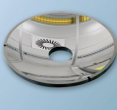


Abb. 7: Reflexion von Mo/Si ohne und mit Barrierschichten von 26 nm bis 34 nm.

Fig. 7: Reflectance of conventional Mo/Si and interface-engineered multilayer mirrors from 26 nm to 34 nm.



The common feature of EUVL multi-layer coatings is high requirements for thermal and radiation stabilities that has recently been studied and discussed [4]. The maximum achieved experimental reflectances of optimized Mo/S multilayer mirrors in the wavelength range from 13.5 nm to 34.0 nm are shown in Fig. 6. The transition from standard Mo/Si to enhanced three-layer design is frequently used to improve the coating reflectance in the spectral range from 25 nm to 35 nm (Fig. 7).

### Spectral range from 6 nm to 12 nm

At wavelengths shorter than the Si L-edge, a number of efficient new multilayer systems have currently developed mainly due to progress in free-electron X-ray lasers and physics of plasma diagnostics.

The optical constants of boron make it the best spacer material for the wavelengths from 6.7 nm to 11.0 nm. As shown 11.0 nm in Fig. 8, the reflectances of 10.2 % and 26 % can be achieved near boron K-absorption edge by B<sub>4</sub>C-based multilayer mirrors having 80 and 200 bilayers, respectively.

The typical bandpass (FWHM) of high-reflectance B<sub>4</sub>C-based coatings having N = 200 is ~ 0.04 nm. The reflective performance of B<sub>4</sub>C-based mirrors can be considerably enhanced by interface – engineered design (diffusion barriers). The reflectances of 37.4 % and 43.8 % at the wavelength of 10.0 nm were measured on interface – engineered mirrors designed at incidence angles of 1.5 and 45 degrees, respectively (Fig. 9).

### Spectral range from 2 nm to 5 nm

Much effort is being put into realizing high-reflectance multilayer coatings for the “water window” spectral range (2.33 nm–4.37 nm). The driving force is prospects of high-resolution microscopy in the “water window” and deep-space telescope. In last few years new high-reflectance multilayer structures on the basis of the Sc and 3d-transition metals (Ti and V) have been produced for operation in water window, between the carbon ( $\lambda = 4.4$  nm) and oxygen ( $\lambda = 2.4$  nm) K-edges.

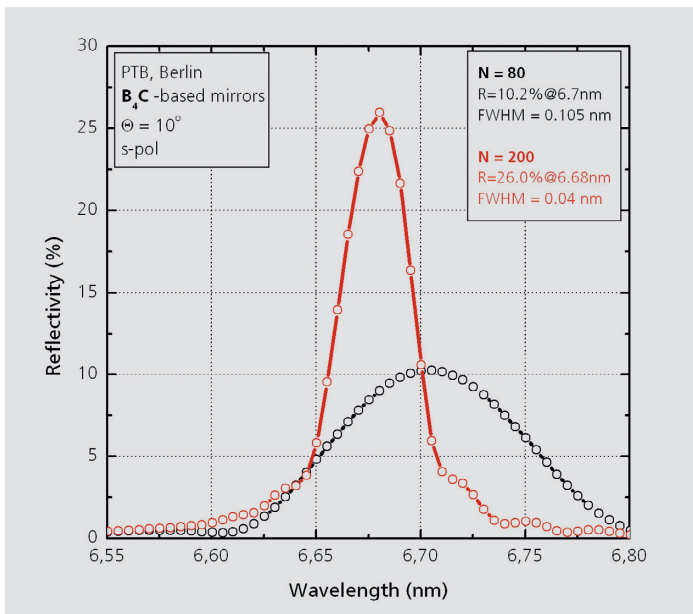


Abb. 8: Reflexion von Multilayern auf B<sub>4</sub>C-Basis an der B K-Absorptionskante.

Fig. 8: Reflectance of B<sub>4</sub>C-based multilayer mirrors close to the B K-edge.

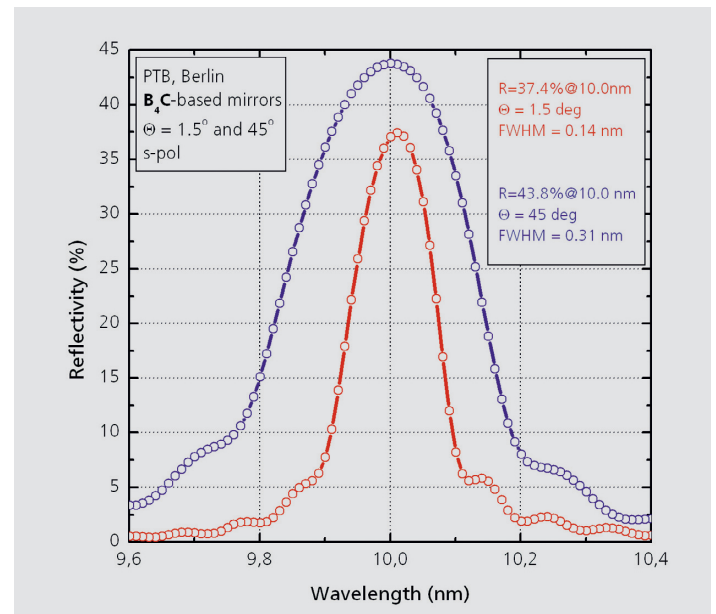


Abb. 9: Reflexion von barriereoptimierten Multilayern auf B<sub>4</sub>C-Basis für 10 nm.

Fig. 9: Reflectance of interface-engineered B<sub>4</sub>C-based multilayer mirrors designed for 10 nm.

Bisher wurde eine maximale Reflexion von  $R = 17,3\%$  bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 3,12\text{ nm}$  erreicht. Wegen der konstruktiven Interferenz von zahlreichen Grenzflächen ( $N = 400$ ) beträgt die spektrale Bandbreite nur  $\text{FWHM} = 0,008\text{ nm}$  (Abb. 10). Durch den Einsatz optimierter Barrierschichten bei Multilayerspiegeln auf Sc-Basis konnten Reflexionen von  $R = 15\%$  ( $N = 300$ ) und  $R = 20,2\%$  ( $N = 400$ ) bei einer Wellenlänge von  $3,12\text{ nm}$  nachgewiesen werden (Abb. 10). Die Reflexionserhöhung kann im Wesentlichen auf eine Glättung der Grenzflächen im Multilayer zurückgeführt werden (Abb. 11). Die Reflexion von Multilayerspiegeln auf V-Basis für eine Arbeitswellenlänge von  $\lambda = 2,44\text{ nm}$  konnte ebenfalls durch den Einsatz von Barrierschichten optimiert werden und erreicht derzeit  $R = 5,2\%$  (Abb. 11).

Tabelle 1 gibt einen Überblick über sämtliche am Fraunhofer IOF Jena entwickelten EUV/Röntgen-Multilayerspiegel für einen Spektralbereich von  $2,5\text{ nm}$  bis  $130\text{ nm}$ .

### Danksagung

Die Autoren bedanken sich beim BMBF (FKZ: 13N8917), DAAD (A/05/56634) sowie Cymer Inc. und Intel Corp. für die finanzielle Unterstützung der FuE-Arbeiten. Unser Dank gilt Ute Kaiser (Universität Ulm) für die TEM-Untersuchungen, Wieland Stöckl, Michael Scheler und Thomas Müller für die technische Unterstützung sowie dem Team um Frank Scholze und Christian Laubis (Physikalisch-Technische Bundesanstalt Berlin) für zahlreiche Reflexionsmessungen im EUV und weichen Röntgengebiet.

### Literatur:

- /1/ Yulin, S.: in N. Kaiser and H. Pulker (Eds.), Optical Interference Coatings, Springer Series in Photonics, 2003.
- /2/ Taracheva, E.; Yulin, S.; Feigl, T.; Kaiser, N.: "High-performance multilayer coatings for  $106\text{ nm}$ ", SPIE 6705, 2007.
- /3/ Yulin, S.; Schäfers, F.; Feigl, T.; Kaiser, N.: "Enhanced reflectivity and stability of Sc/Si multilayers", SPIE 5193, 2003.
- /4/ Yulin, S.; Benoit, N.; Feigl, T.; Kaiser, N.: "High-temperature multilayers", SPIE 5751, 2005.

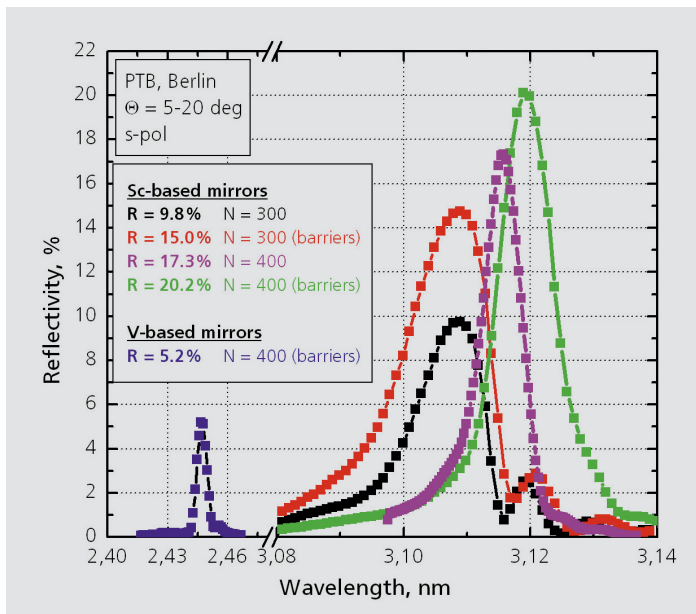


Abb. 10: Reflexionserhöhung von Multilayern auf Sc- und V-Basis durch Barriereoptimierung.

Fig. 10: Enhanced reflectance of Sc- and V-based multilayer mirrors with interface engineering.

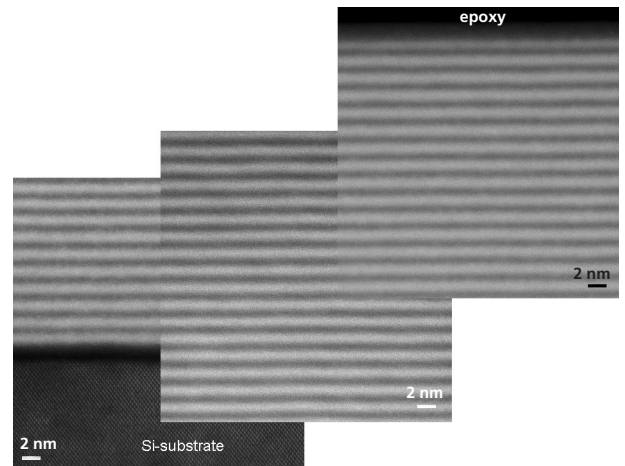
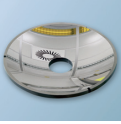


Abb. 11: Grenzflächenstruktur barriereoptimierter Multilayer auf Sc-Basis mit  $N = 300$  in Substratnähe (unten), in der Mitte des Stacks (Mitte) sowie in der Nähe der Oberfläche (oben).

Fig. 11: Interface structure of interface-engineered Sc-based multilayer having  $N = 300$  close to the substrate (down), in the middle of the stack (middle) and close to the surface (top).



The optical performance of such mirrors is extremely sensitive to the multilayer design and interface quality (mainly interface roughness). Up to now the maximum near-normal incidence reflectance of 17.3 % at the wavelength of 3.12 nm was achieved on Sc-based multilayer coating having 400 bilayers (Fig. 10).

Due to constructive interference from many interfaces, the spectral bandwidth is only 0.008 nm. To minimize interface roughness in Sc-based multilayer structures, interface-engineered designs were successfully realized. It was shown that interface-engineered Sc-based mirrors with 300 and 400 bilayers have peak reflectances of 15 % and 20.2 % at the wavelength of 3.12 nm, respectively (Fig. 10). The enhanced reflectance can be explained by interface roughness smothering inside interface-engineered multilayer stack as it is shown in Fig. 11.

Similar interface-engineered conceptions were applied to V-based multilayer mirrors designed at the wavelength of 2.44 nm and a near normal incidence reflectance of 5.2 % was achieved (Fig. 10).

Table 1 provides an overview of all EUV/Soft X-ray multilayer mirrors developed at Fraunhofer IOF Jena.

References:

- /1/ Yulin S.: in N. Kaiser and H. Pulker (Eds.), Optical Interference Coatings, Springer Series in Photonics, 2003.
- /2/ Taracheva, E.; Yulin, S.; Feigl, T.; Kaiser, N.: "High-performance multilayer coatings for 106 nm", SPIE 6705, 2007.
- /3/ Yulin, S.; Schäfers, F.; Feigl, T.; Kaiser, N.: "Enhanced reflectivity and stability of Sc/Si multilayers", SPIE 5193, 2003.
- /4/ Yulin, S.; Benoit, N.; Feigl, T.; Kaiser, N.: "High-temperature multilayers", SPIE 5751, 2005.

### Acknowledgments

The authors acknowledge the financial support for this R&D work by BMBF (FKZ: 13N8917), DAAD (A/05/56634), Cymer Inc. and Intel Corp. The authors would like to thank Ute Kaiser (University of Ulm) for TEM studies, Wieland Stöckl, Michael Scheler and Thomas Müller for the technical support and the team of Frank Scholze and Christian Laubis (PTB Berlin) for the EUV/soft X-ray reflectivity measurements.

Tab. 1: EUV/Röntgen-Multilayerspiegel am Fraunhofer IOF Jena.

Tab. 1: EUV/soft X-ray multilayer mirrors at Fraunhofer IOF Jena.

Multilayer	$\lambda$ range	$\lambda$	N	R	FWHM
Al - based	70 ... 150 nm	110 nm	—	60.0 %	—
Sc - based	40 ... 50 nm	46 nm	20	52.0 %	4.6 nm
Si - based	12.4 ... 40 nm	33 nm	20	33.7 %	3.6 nm
		30 nm	20	36.8 %	2.7 nm
		26 nm	25	25.8 %	2.6 nm
		24 nm	30	29.4 %	2.4 nm
		21 nm	40	38.5 %	1.6 nm
Si - based	EUV lithography	13.5 nm	60	69.6 %	0.5 nm
B - based	6.4 ... 11.0 nm	10.0 nm	100	37.4 %	0.14 nm
		6.7 nm	200	26.0 %	0.04 nm
Sc - based	3.1 ... 4.4 nm	4.4 nm	300	7.1 %	0.021 nm
		3.1 nm	400	20.2 %	0.008 nm
V - based	2.4 ... 3.1 nm	2.5 nm	400	5.2 %	0.006 nm