

レーザー生成プラズマを用いた 次世代リソグラフィEUV光源

西原 功修¹, 西村 博明¹, 望月 孝晏², 佐々木 明³

¹大阪大学 レーザーエネルギー学研究センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6)

²兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所 (〒678-1205 兵庫県赤穂郡上郡町光都3-1-2)

³日本原子力研究所 関西研究所 光量子科学研究センター (〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅見台8-1)

Laser Produced Plasma for EUV Light Source For Lithography

Katsunobu NISHIHARA,¹ Hiroaki NISHIMURA,¹ Takayasu MOCHIZUKI,² and Akira SASAKI³

¹Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6, Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

²Laboratory of Advanced Science and Technology for Industry (LASTI), University of Hyogo
3-1-2, Kouto, Kamigori, Ako-gun, Hyogo 678-1205

³Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute
8-1, Umemi-dai, Kizu-cho, Soraku-gun, Kyoto 619-0215

(Received March 18, 2003)

We describe properties of laser produced plasmas (LPP) for extreme ultra violet (EUV) light source for next generation lithography as an industrial application of LPP. We briefly present three topics related to the LLP-EUV light source; laser intensity dependence of conversion efficiency from laser light to EUV light with 13.5nm wavelength with 2% bound width with tin target, present understanding of EUV emission from xenon target, and atomic processes in those targets.

Key Words: EUV light, Laser produced plasma, Light source for tin and xenon plasma

1. はじめに

高出力レーザーパルスを物質に集光照射し生成された高温・高密度プラズマからは様々な電磁波が強力に放射される。1960年代のレーザー黎明期からすでに、このようなレーザープラズマ電磁放射の「光源」としての可能性が探られてきた。特に、Qスイッチ発振、モードロックなどの新しいレーザー技術の進展に伴いレーザーピーク強度が飛躍的に向上するとともに、レーザー核融合研究が主たる牽引役となってレーザーエネルギーが増大した結果、レーザーの高出力化は目覚ましい発展を遂げ、数keVのエネルギーをもつ軟X線発生を中心にレーザープラズマ放射の研究が大きく進展した。

レーザー核融合では、このような軟X線を用いたX線シャドウグラフィなど爆縮ターゲットの高密度プラズマ診断に加え、レーザー光を高Z物質に照射し発生する0.1~1.5 keV程度のX線を燃料ペレットの駆動源に使う「間接照射方式」の研究が進み、絶対放射スペクトル計測やプラズマ放射の理論・シミュレーション研究が大きく進展した。さらに、近年チャープトパルス増幅法が広く普及し、テーブルトップ・テラワットレーザー光が比較的容易に得られるようになった結果、現在ではマイクロ波か

らテラヘルツ電磁波、極端紫外線(EUV: Extreme Ultra-violet)、サブkeV、keVのX線、そしてMeVのエネルギーをもつγ線に至るまで幅広いスペクトル領域の電磁波放射が可能となっている。

これら時間的・空間的に極めて限られた領域から放射されるレーザープラズマ放射高輝度光は、従来の光源にない優れた特徴を持ち、その発生物理の解明と共に、様々な応用が展開されつつある。特に、発生時間がレーザーパルス幅程度であるため、ナノ秒からサブピコ秒の時間幅をもつ光源として、高速で運動する微小物体の過渡現象の観測、例えば生体等のラジオグラフィ¹⁾や固体物性研究における超短パルスプローブ^{2,3)}、高速被破壊検査などへの応用に適している。また、点光源であるため、光のハンドリングが比較的容易であり、放射光への変換効率が比較的高いため、様々な科学研究への応用やリソグラフィ^{4,5)}光源などへの応用が広がりつつある。中でもレーザープラズマ放射極端紫外線を用いたリソグラフィ技術は、ユビキタス・ネットワーク社会を支える半導体集積回路の超微細化を進める上で欠かせないキーテクノロジーの一つとして、今、大きな期待が寄せられている。

縮小投影露光システムで用いられる光源はKrFレーザー

(波長248 nm)からArFレーザー(193 nm)へと、その短波長化への歩みを早めている。現在製造ラインへの導入のための開発が進められているF₂レーザー(157 nm)光リソグラフィでも線幅60 nmが限界とされている一方で、わずか15 nmの空間にMOS型トランジスタができることが実証された⁶⁾。次世代半導体製造における超微細化には、これまでの光源波長を一気に縮めたEUV領域への踏み込みが求められている。このような動きを背景に、線幅50 nm以下の次世代半導体プロセスへ向けた波長13-14 nmの極端紫外線(EUV)を光源とした光リソグラフィ技術の開発が進められ、熾烈な国際競争が繰り広げられている。

リソグラフィ用のEUV光源に対する要求仕様値は大手半導体素子供給企業や製造装置企業の協議により半年ごとに更新されており、現在(2004年3月)のところ、中心波長13.5 nm、2%帯域に、繰り返しレート7-10 kHz以上のパルスで、光源装置取り出し部(EUV光を露光装置本体へ引き継ぐ窓口)でのEUVパワーが115 W以上必要とされている^{7)†}。EUV光は極めて吸収され易く、従来の透過型光学系は使用できない。中心波長が13.5 nmに選ばれたのはEUVリソグラフィシステムにおいて使用される光学系がMo/Si多層膜反射鏡が採用されるからである。レーザープラズマ放射EUVリソグラフィシステムの構成概要をFig. 1に示す。光源プラズマから光取り出し部までの捕捉鏡とその占有立体角で決まる光伝達効率はおおよそ30%程度なので、光源プラズマ自体からは実に300 W以上もの出力値が要求されていることに相当する。このような大出力化に加え、プラズマからは様々なデブリ(プラズマ粒子や、周辺ターゲット、電極などから放出される微粒子の総称)が飛散するので、周辺のEUV光学素子や排気装置などを汚染、あるいは破壊する。従って、デブリの発生に関する物理を明らかにし、それをいかに抑制するかも重要な研究課題となっている。

日本では経産省のもと2002年6月EUVリソグラフィシステム開発のための技術組合EUVA(Extreme Ultraviolet Lithography System Association)が組織され、EUV光源開発が最重要課題の一つとして取り上げられた。同年、国内

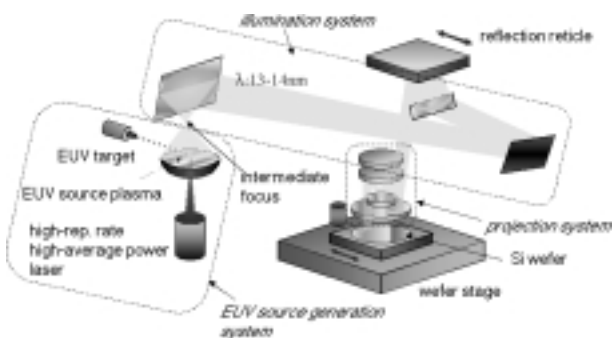


Fig. 1 Schematic of laser-plasma EUV lithograph system. EUV light from the source plasma is collected by the first mirror, and transferred to the intermediate focus, at which the source power is defined.

6大学がレーザープラズマ光源(LPP)ならびに放電プラズマ光源(DPP)開発に関するEUVA再委託研究が開始された。また、平成15年度より開始された文部科学省リーディングプロジェクトの下で、大阪大学レーザー核融合研究センターを中心に、姫路工大、九州大、宮崎大、などを含めた国内12研究機関と共同で新たに極端紫外線(EUV)リソグラフィ用レーザープラズマ光源開発研究が推進されている。

レーザープラズマEUV光源開発研究には高出力レーザー技術、ターゲット技術、プラズマ計測技術、理論・シミュレーションの4つの研究項目が重要であり、またこれらの要素が互いに深く連携し成果を相互にフィードバックしていく必要がある。このような研究課題やアプローチはレーザー核融合研究と多くの共通点があり、これまで培われてきた核融合の物理的基盤や、レーザー、ターゲット製作、プラズマ計測などの技術的研究資源がレーザープラズマの産業応用に生かされようとしている。

本小特集では、13.5 nm波長光源として、光源材料の有力候補とされているXe(キセノン)とSn(スズ)に関する研究の現状とこれからの研究課題を整理してみる。

2. パワーバランスと変換効率のレーザー強度比例則

前節で述べたように、次世代半導体製造に用いるリソグラフィ光源として、波長13.5 nm(バンド幅2%)、放射出力300-400 W(繰り返し10 kHz程度)が要求されている。また、光源の大きさとその広がり立体角の積、すなわちエタンデュは、1 mm²srが要求されている。波長13.5 nmを放出する光源プラズマとして、Xe, Snなどが考えられており、SnやXeの波長13 nm帯の発光は、それぞれイオンの主量子数 $n=4$ のサブシェル間(4f-4d)、および主量子数 $n=5$ と $n=4$ の(5p-4d)の遷移によると考えられている。ここでは、平成15年度から始まった文科省のリーディングプロジェクトで得られた理論モデリングの研究成果を中心に、光源に対する要求要件を満たすプラズマパラメータ、そのパラメータを実現するためのレーザープラズマ条件とその物理、および課題について述べる。特に、パワーバランスから求めた照射レーザーからEUV光への変換効率のレーザー強度比例則を示す。EUV光源全体については、プラズマ・核融合学会誌の特集を参照されたい⁸⁾。また紙面の都合上、ここでは紹介できないがXe⁹⁾、あるいはSn¹⁰⁾ターゲットを用いたレーザー生成EUV光源の開発実験研究が行われている。

上記エタンデュを満たす光源プラズマの大きさ(S)は、立体角 π の光を集光できるとすると、直径は600 μ m程度となる。レーザープラズマの膨張距離はプラズマの音速とパルス幅の積で決まるが、この光源プラズマのサイズは、(後述する)最適プラズマ温度でのプラズマ膨張距離に比べて大きく、光源プラズマの膨張は1次元的とみなすこ

†: URL: www.sematech.org.

とができる。その結果、2次元、あるいは3次元膨張に比べ膨張損失は軽減できる。繰り返し10 kHzで前記出力を得るには、1ショットあたりのEUV光エネルギー (E_{EUV})は30-40 mJであり、パルス長 (τ_{EUV})を1-10 nsとすると、光源プラズマのサイズから決まるEUV光のフラックスは、 $10^9 \sim 10^{10}$ W/cm²である。照射レーザー光からEUV光への変換効率を1%とすると、レーザー強度は、 $10^{11} \sim 10^{12}$ W/cm²となる。この強度のEUV光を放出するのに必要なイオン数密度は、単位面積、単位時間当たりのフォトン数から求めることが出来る、すなわち $E_{EUV}/(h\nu\tau_{EUV}S) = 4I_{OD=1} n_{4f-4d}$ or $5p-4d A_{Eien}$, ここで $I_{OD=1}$, A_{Eien} は、それぞれオパティエーが1となる長さ放射インシユタイン係数である。 $I_{OD=1} = 10 \mu\text{m}$, 振動子強度を1とし、EUV光を放出するイオン数の割合を0.1とすると、プラズマのイオン密度は、 $10^{18} \sim 10^{20}$ cm⁻³と見積もることが出来る。

Snのような高Zターゲットにレーザーを照射すると、電子の熱伝導とコロナからの放射により2つのアブレーション面が形成され、その間に高密度LTE領域が出来る。詳細は割愛するが、コロナ領域でのパワーバランスを考えることにより、プラズマの温度をレーザー強度から概算することができる¹¹⁾。等温膨張を仮定すると、コロナ領域の密度、および速度は、それぞれ $n_i(x, t) = n_0 \exp(-x/tc_s)$, $v(x, t) = c_s + x/t$ で与えられる。ここで $c_s = (Z^*T_e/m_i)^{1/2}$ は音速、 $Z^*(n_0, T_e)$ は電離度、 T_e は電子温度、 m_i はイオンの質量である。高原子番号物質のアブレーションでは、運動エネルギーだけでなく電離に要するエネルギーと放射エネルギー損失が重要となる。アブレーションプラズマが $x=0$ で音速に達し、そこでのイオン密度を n_0 とすると、運動エネルギー束、電離に必要なエネルギー束、および放射エネルギー束は、それぞれ $I_{kin} = 3Z^*n_0T_e c_s$, $I_{ion} = 3/2Z^*n_0T_e c_s + E_{ion}n_0 c_s$, $I_{rad} = P_r c_s t_L / \alpha$ となる。ここで、 $E_{ion}(n_0, T_e)$ は、電離度が $Z^*(n_0, T_e)$ に達するのに要する単位原子あたりの電離エネルギーであり、また $P_r(n_0, T_e)$ は、単位体積あたり、単位時間当たりの放射率である。 $Z^*(n_0, T_e)$, $E_{ion}(n_0, T_e)$, $P_r(n_0, T_e)$ にはCORONAコードの結果を用いる。CORONAコードは主量子数と方位量子数を区別した平均原子コードであり、遮蔽定数を物質ごとに最適化している。今考えている密度・温度領域のプラズマで、衝突放射平衡近似を用いた場合では、放射率は、近似的には n^α に比例し、 α は約1.5である。放射の多くは輝線スペクトルでありその損失は密度に比例するが、衝突放射平衡では密度の増加に伴い励起と電離が促進され、その結果として励起レベルのポピュレーションが増加し、全体の放射率は密度の1.5乗に比例して増加する。コロナプラズマ中のこれらの損失はアブレーション面より高密度領域でのエネルギー損失に比べて非常に大きく、これらの損失の総計は、吸収したレーザーエネルギー束と一致すると仮定できる。すなわち $I_L = I_{kin} + I_{ion} + I_{rad}$ 。この関係から求めた、レーザー強度と各損失エネルギー束、および電子温度の関係を求めたのがFig. 2である。ただし、 $n_0 = 4 \times 10^{19}$ cm⁻³を仮定した。なお、膨張に伴う運動エネルギー損失、電離に要する損失は密度 n_0 に比例し、また放射損失は高々密度の1.5乗でしか増加しない

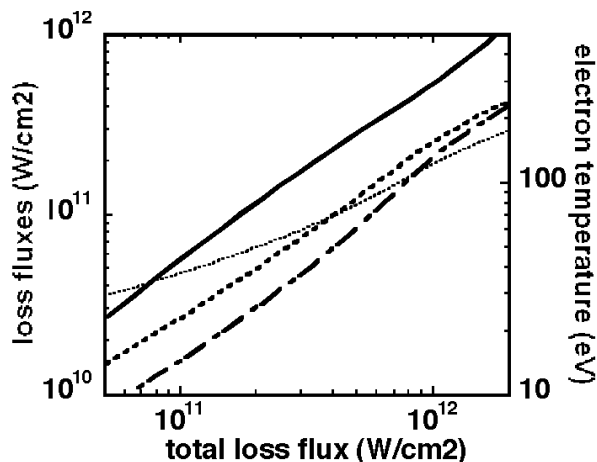


Fig. 2 Laser intensity dependence of various losses and electron temperature (solid line: radiation loss, dotted line: ionization losses, dash-dotted line: kinetic losses, and thin dotted line: electron temperature).

ため、Fig. 2に示した全損失に対する各損失の割合は、仮定した密度に対する依存性は少ない。実際にここで得られた結果は $n_0 = 1 - 5 \times 10^{19}$ cm⁻³の範囲内ではあまり変化しない。図から明らかなように、照射レーザー強度を 5×10^{10} W/cm²から 2×10^{12} W/cm²に変化させると、電子温度は約30-200 eVの範囲で変化する。3つのエネルギー損失の中では、放射損失が最も大きく、ここに示したレーザー強度範囲では全体の約50%である。このことは観測結果とも一致している。放射損失に次いで電離に要するエネルギーが大きく、運動エネルギー損失は最も小さい。図に示した範囲内で、放射損失の割合がほぼ一定であり、温度の上昇が全損失の増加に比してあまり上昇しないのは、各損失がいずれも温度の上昇とともに急激に増加することに起因している。

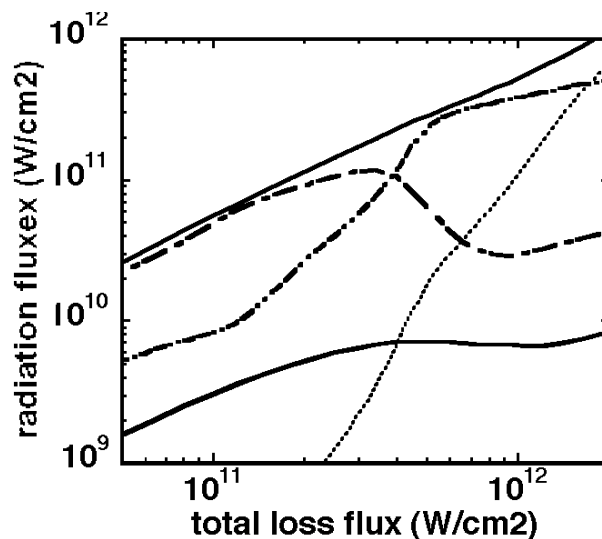


Fig. 3 Laser intensity dependence of radiation flux (thin solid line: total radiation flux, thin dotted line: radiation with wavelength 1-3 nm, double dots-dotted line: 3-10 nm, dash-dotted line: 10-20 nm, thin solid line: 13.5 nm (2% band width)).

先に述べたように、放射は広い波長領域に渡っており、その多くは輝線スペクトルである。水素近似原子モデルから求めた放射スペクトルの照射レーザー束依存性はFig. 3に示すとおりである。ここで500 eV以上(波長1-3 nmに対応)の放射は、主に Sn^{22+31+} イオンの3d-4f遷移(Mバンド)によるものであり、レーザー強度が 10^{12} W/cm^2 以上で顕著となる。また、200-500 eV(波長3-10 nmに対応)の放射は、主に Sn^{22+31+} イオンのNバンド放射であり、レーザー強度が $5 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 近傍で顕著となる。100 eV以下(波長3-10 nm)の放射は、 Sn^{8+13+} イオンの4d-4f, 4p-4d遷移である。これらの放射スペクトルのレーザー強度依存性は実験結果と良く一致する。

CORONAコードのスペクトル分解能は2%バンド幅の精度がなく、定量的評価は、詳細コードの解析結果を待たねばならないが、ここでは次の仮定の基に変換効率を概算する。13.5 nm(2%バンド幅)の放射源として、2つの領域を考える、すなわちコロナ領域とLTE領域である。コロナ領域の放射はCORONAコードの波長12.5 nm-14.5 nmの放射の10%が波長13.5 nmの2%バンド幅に含まれるとする。高密度領域からの放射は、コロナ領域からの放射の半分が高密度領域で吸収され、その輝度温度で決まるプランク分布の光が放出されるとする。後に述べるXeのスペクトル解析結果から、この仮定はほぼ成り立っていると推察できる。このようにして求めた13.5 nm(2%バンド幅)の放射強度を、Fig. 3の実線で示す。

このようにして求めた変換効率をFig. 4に示す¹²⁾。図から明らかなように、理論結果は、阪大の激光XIIレーザーの12本レーザービームを球Snターゲットに照射した実験結果¹³⁾と非常に良く一致する(実験では1.2nsのレーザーパルス幅を用いた)。低レーザー強度で実験値が理論値より低い変換効率になるのは、レーザーパルス幅が短くコロナ領域が十分に形成されないため、レーザー吸収率が低下することによると考えられる。レーザー強度が $5 \times 10^{10} - 10^{11} \text{ W/cm}^2$ で最大変換効率3%が達成される。図中の破線は、高密度領域からの放射を示しているが、この結果

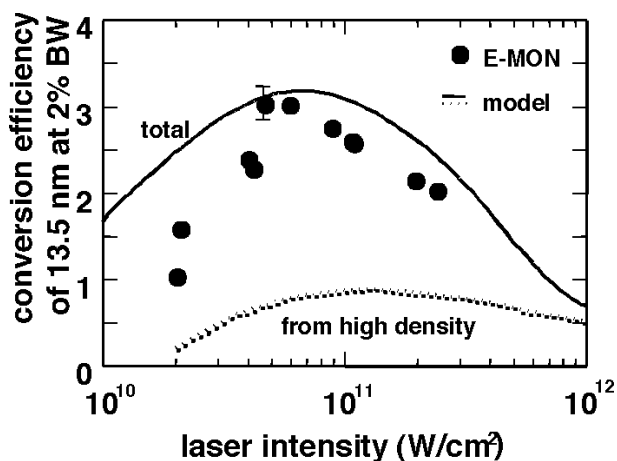


Fig. 4 Laser intensity dependence of conversion efficiency from incident laser to EUV light with 2% bandwidth (solid line: theory, dots: experiment, dotted line: radiation from high density region (theory)).

は、 10^{12} W/cm^2 近傍の高強度領域では、コロナプラズマの温度が高く波長13.5 nm近傍のEUV光を放射する比較的低電離度のイオンが存在しないことを示しており、13.5 nmの放射は高密度LTE領域からのみであると考えられる。このレーザー強度では、低い変換効率しか得られない。一方、3%の高い変換効率は、アブレーション領域からコロナ領域へと移行する部分で13.5 nm近傍の輝線スペクトルを放出するのに最適な温度領域が、比較的高い密度で達成されていることに起因する。なお、この結果はSnの原子データを用いて評価したものであり、変換効率のレーザー強度の最適値とその絶対値についてはSnに対してのみ成り立つことは言うまでもない。

3. キセノンターゲット実験

本節では、実用的な高出力レーザープラズマX線源を目指して姫路工業大学で行われてきた研究を中心に、その主な結果について紹介する。ターゲットの高速供給性やデブリ問題フリーなどは、連続運転を前提とする実用的X線源にとって極めて重要な因子である。それ故、姫路工業大学では、キセノン(Xe)ターゲットに焦点を絞って実験を行ってきた。

X線源の高輝度化には、レーザー集光点内での高いX線変換効率が要求される。そのためには生成されるプラズマの密度・温度・体積の最適化が必要である。レーザープラズマ光源は、1990年頃までは近接露光X線リソグラフィに応用することが目標とされていたが、光マスクなどの光源以外での困難な問題のために進展せず、1990年代半ばより極端紫外光リソグラフィ(EUVL)用光源の候補として実用化研究が米国を中心に密かに、しかし強力に進められるようになった。

望月等はX線発光スペクトルの原子番号依存性を実験的に調べ¹⁴⁾、希ガスを冷却して液体又は固体とした希ガスクライオターゲットが上記ターゲット物質としては実用上最適であることを提示した。またターゲット物質移送路としてパイプ体を移送管として用いることを例として上げ、高圧によりパイプ体先端のノズルから押し出された液状ターゲットをレーザー照射する構成を示した。押し出されたターゲットが表面張力により液滴形状となれば液滴間が断熱されるため、液状ターゲットの加熱・気化を低減できることを指摘した。

一方、ガスパフ型超音速ガスジェット流をターゲットとする研究が精力的に行われた^{15,16)}。しかしガスジェット流の角度拡がりが大きく、結果として集光点周辺の比較的低密度ターゲット物質にもレーザーエネルギーが吸収され、さらに集光点で発生したX線も減衰されるために、高輝度で高効率を確保することが困難であった。ターゲット流と同心円のヘリウムガス流壁で閉じこめるダブルノズル法が考案され、レーザー集光点におけるターゲット物質の密度の向上が試みられた¹⁷⁾。

1996年頃より米国を中心にEUVL技術の開発が本格的に始められた。Xeは13 nm波長帯の定番発光体と報告されていたが、発光スペクトル形状は発表されていなかった。

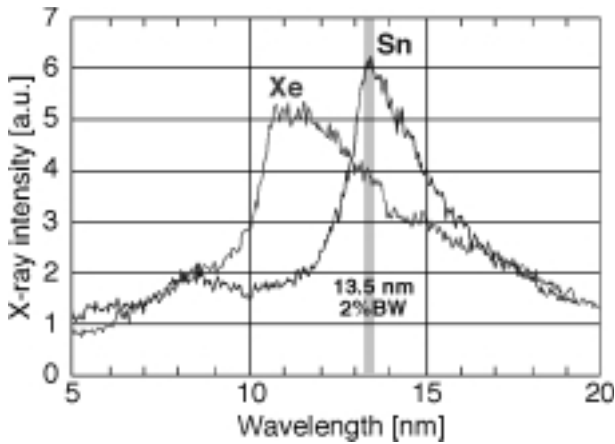


Fig. 5 Emission spectra of solid Xe and Sn targets irradiated by 1 mm laser of 10^{11} W/cm² in 20 ns.

そこで、1996年後半より姫路工業大学が固体Xeターゲットの発光スペクトルを透過型回折格子分光器により観測し¹⁸⁾、Fig. 5に示すような発光スペクトル形状を初めて報告した。ここで発光強度ピークの波長は10.8 nmであることが明らかになった。当時、我が国でEUVL用光源の実用化を目指してXeクライオターゲットを研究していたのは姫路工業大学のみであった。この頃、11 nmでの高反射率ミラーとしてはMo/Be多層膜ミラーが研究されていたが、より簡便に安定に製作することができるMo/Si多層膜ミラーが本命と定められた。こうして、Xeの発光ピークである11 nmとMo/Si多層膜ミラーの中心波長13 nmとの mismatchesはその後の課題として今日に至っている。

上記の結果を踏まえ、望月等は高速ターゲット供給装置の開発研究を開始した。液体窒素温度に冷却されたドラム形回転体の表面に固体Xe層を成長させ、ドラムの回転運動と回転軸方向への並進運動によって連続して新鮮な固体Xe表面をレーザー集光点に供給する方式を開発した¹⁹⁾。Fig. 6に示すように、X線の発生点付近を除いてドラムとそれを囲む壁との隙間に高密度Xeガスを供給することによって、プラズマ生成時に生じるクレーターを回転中に修復できる。上記の回転する固体Xeターゲットにパルスレーザーを320 Hzで照射し、X線の連続発生を試みた²⁰⁾。このときレーザー入力100 Wに対するEUV発光強度は、1 W/2 psr/2 %BW弱程度と見積もられた。さらにEUV発光の向上を求めて、XeとCO₂との混合クライオターゲット

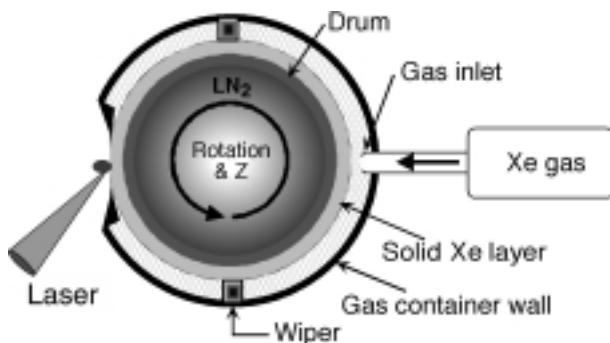


Fig. 6 Schematic view of cryogenic rotating drum target.

ト実験を行い、Xeのモル割合を10%程度に減じても発光強度が低下しないことを見出した²¹⁾。

錫(Sn)の発光ピークは13.5 nm 近傍にあり、Xeに比べて有利である。しかし、Fig. 5に示すように、まったく同一のレーザー照射条件で得られた両ターゲットの発光スペクトルを比較すると、13.5 nmでの強度比はXe : Sn = 1 : 1.6~2.0であり、今のところ決定的な差とは考えられない²²⁾。各ターゲットに対する最適レーザー照射条件が異なると考えられるので、この比は変動すると思われる。

EUVL用光源の高出力化には繰り返し周波数が7 kHz以上の高出力レーザーが要求されており、ターゲットからの発生ガス負荷の低減および排気・回収が課題として残っている。即ち、プラズマ光の照射によりターゲット物質が蒸散すること、発生したターゲットガスの吸収による実効的X線変換効率の低下の問題である。

前述した超音速ガスジェット流に比べ、液滴ターゲットはレーザー集光照射点で材料として最少量の液体密度のターゲット材を保証している。しかし高繰り返しレーザーに対応した液滴ターゲットの高速性とタイミングの正確性が必須である。

実用的EUVL用光源に要求されるEUV@13.5 nm光出力は、発光点で230 W/2 psr/2 %BWという途轍もないパワー領域である。極めてチャレンジングな目標である。まだまだ、頂上アタックの道が決まったとは言えない。未知領域に踏み込んで道を探るには5 kW程度の高出力レーザーを用いた実験が必要であろう。

4. EUVプラズマにおける原子過程

EUV光源の媒質には、現在、XeやSnの10個程度のイオンの原子スペクトルを用いることが最も有望と考えられ²³⁾、レーザーまたは放電によって生成したプラズマを用いた実験研究が行なわれている。

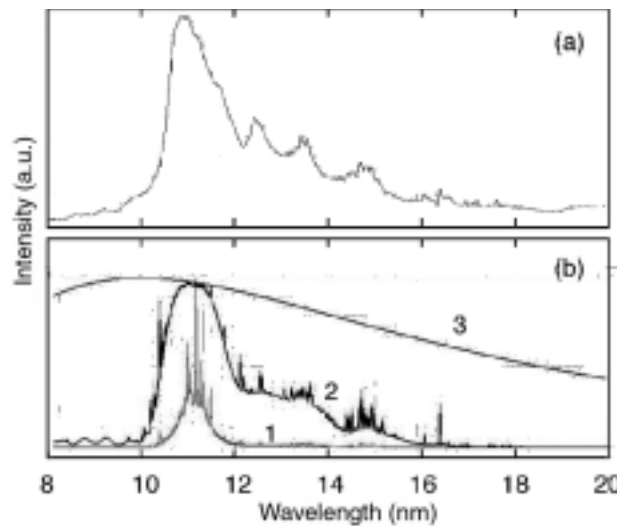


Fig. 7 Measured (a) and calculated (b) EUV spectrum of Xe. Calculation is carried out with $T_e = 25$ eV, $n_e = 10^{21}$ /cm³, and plasma size of $r = 4$ μ m. Emissivity(1), radiation intensity from the plasma(2) relative to Planck radiation(3) are shown.

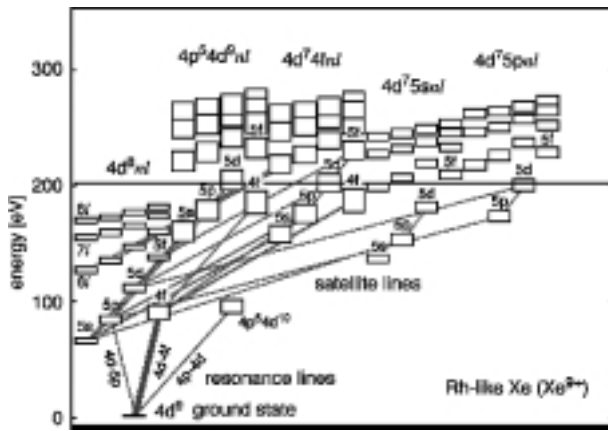


Fig. 8 Energy level diagram of Rh-like Xe (Xe^{9+}).

Xeプラズマのスペクトルは、Fig. 7 (a)に示すように²⁴⁾、軽元素のスペクトルと全く異なる幅広いバンドスペクトルをなし、プラズマ条件により放射のピーク波長や形状が大きく変化の特徴を持っている。

XeやSnのスペクトルの性質はイオンの構造に起因していると考えられる²⁵⁾。電子温度20-50 eVの範囲では、プラズマ中でPd~Kr様の間のいくつかの価数のイオンの分布が支配的であり、主要な発光は、Fig. 8に示すように軌道電子数 n として電子配置が $4d^n$ である基底状態と、 $4d^{n-1}4f$ 、 $4d^{n-1}5p$ 励起状態との間の4d-4f、4d-5p共鳴線に起こる。このような電子が半分程度満たされた(half-filled)軌道を持つ電子配置に対応するエネルギー状態は多数の微細構造レベルを持ち、スペクトル線はしばしば数千本以上に分裂して、全体で0.1 nm以上の幅を持つバンドスペクトル(transition array)を形成する。さらに価数の異なるイオンの発光やサテライト線の発光が加わることにより、スペクトルは非常に複雑になる。

共鳴線のうち、4d-5p遷移の波長はイオン価数が増すに従って短波長にシフトするのに対して、4d-4f遷移の波長は元素毎にほぼ一定で、Xeでは11 nm、Snでは13.5 nmである^{26,27)}。複数の価数のイオンからの発光が重畳する4d-4f遷移が最も強く発光し、EUV光源への利用が考えられているのは、Xeの主として10価イオンの4d-5p遷移、またはSnの4d-4f遷移である。

EUV光源研究では、CCD検出器を用いた分光計測技術の進歩もあり多くのスペクトルデータが蓄積されるようになってきている。一方、理論的にはHULLAC²⁸⁾やGRASP²⁹⁾などの原子物理、原子過程コードによる解析が進められている。XeやSnイオンでは、エネルギー準位や振動子強度の計算において電子相関の影響が大きく、適切な配置混合(Configuration Interaction)を考慮した計算を行なうことは必ずしも容易でないが、発光に寄与する遷移の波長、強度をくまなく調べて実験結果と比較することによって発光メカニズムが明らかになってきた。

観測されるXeのスペクトルには、11 nm帯の4d-4f遷移、13.5, 15, 16, 18 nm付近の $Xe^{10+} \sim Xe^{7+}$ の4d-5p遷移に対応するピークが見られるが、11 nm帯のピークの長波長側にはRed Wing構造が、4d-5p遷移のピークにはバックグラウンドが存在し、高密度のレーザープラズマでより顕著に

なることが知られている。

このような構造は、オパシティの影響下での4d-4f、4d-5pおよび4p-4d遷移のサテライト線の寄与によって説明できると考えられる。Fig. 8に示すように、Xeイオンにはサテライト線を放出する多くの二電子(内殻)励起状態がある。レーザープラズマの典型的な条件($n_e > 10^{20}/cm^3$)では、これらの状態のポピュレーションが局所熱平衡状態(LTE)になると考えられる。二電子励起状態は大きな統計重率を持つため、サテライト線の強度が共鳴線と同程度になることがなり得、さらにプラズマが有限の広がりを持つ場合には共鳴線の強度はオパシティの影響で飽和するので、サテライト線の相対的な強度がさらに大きくなる。

Fig. 7 (b)には、サテライト線とオパシティの効果を考慮した計算結果が、観測されたXeスペクトルをほぼ再現することを示す。このような結果をもとにした今後の課題には、効率の評価のために全輻射に対する13.5 nm帯の所謂in band放射の割合を明らかにすること、レーザープラズマに関しては流体シミュレーションと統合した計算を行い、プラズマ条件の最適化を行なうことがあり、また放電励起プラズマに関しては非定常状態のイオンの価数分布、ポピュレーション、発光強度の評価を行なうことが重要と考えられる。そして、EUV研究を通じたプラズマ原子過程の研究の成果は、今後レーザー核融合や宇宙物理研究にも役立つと考えられる。

5. おわりに

レーザー生成プラズマを用いたリソグラフィ光源についてSnターゲットでのレーザーエネルギーから13.5 nm(2%バンド中点)光への変換効率の照射レーザー強度依存性、Xeターゲットでの光源開発実験の経緯の現状、および主要な原子過程について議論した。これらの研究により光源プラズマの要求条件などはかなりの点が明らかになってきている。しかしながら、実用化については最適化条件の探求だけでなく、デブリ除去、高繰り返しターゲット供給などシステム全体に関連している。なお、本解説では紙面の都合上EUV(極端紫外線露光システム技術開発機構)での研究を取り上げなかった。

参考文献

- 1) I. C. E. Turch and J. B. Dance: *X-rays from Laser Plasmas: Generations and Applications* Chap. 10, John Wiley & Sons, West Sussex, England (1999).
- 2) C. Rischel, A. Rousse, I. Uschmann, P. A. Albouy, J. P. Geindre, P. Audebert, J. C. Gauthier, E. Forster, J. L. Martin, A. and Antonetti: *Nature* **390** (1997) 490.
- 3) A. H. Chin, R. W. Schoenlein, T. E. Glover, P. Balling, W. P. Leemans, and C. V. Shank: *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 336.
- 4) For example, B. Yaakobi, H. Kim, J. M. Soures, H. W. Deckman, and J. Dunsmuir: *Appl. Phys. Lett.* **43** (1983) 686.
- 5) D. J. Nagel, C. M. Brown, M. C. Peckerar, M. L. Ginier, J. A. Robinson, I. J. McIlraith, and P. K. Carroll: *Appl. Opt.* **23** (1984) 1429.
- 6) J. D. Meindl Q. Chen, and J. A. Davis: *Science* **293** (2001) 2044.
- 7) V. Banine: *Proc. EUV Lithography Source Workshop*, October 14,

2002 Dallas Texas, International SEMATECH.

- 8) H. Mizoguchi, K. Murakami, S. Okazaki, H. Yoneda, T. Tomie, A. Endo, E. Hotta, H. Sato, and K. Toyoda: *J. Plasma Fusion Res.* **79** (2003) 219.
- 9) A. Endo, T. Abe, T. Suganuma, Y. Imai, H. Someya, H. Hoshino, N. Masaki, G. Soumagne, H. Komori, Y. Takabayashi, and H. Mizoguchi: *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* **5196** (2004) 256.
- 10) T. Tomie, T. Aota, Y. Ueno, G. Niimi, H. Yashiro, J. Lin, I. Matsushima, K. Komiyama, D. H. Lee, K. Nishigori, and H. Yokota: *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* **5037** (2003) 147.
- 11) K. Nishihara: *Jpn. J. Appl. Phys.* **21** (1982) L571.
- 12) K. Nishihara, T. Nishikawa, A. Sasaki, T. Kawamura, A. Sunahara, H. Furukawa, M. Murakami, H. Nishimura, Y. Shimada, M. Nakai, et al.: *Proc. 3rd IFSA, Monterey, Sep. 7-12, 2003*.
- 13) H. Nishimura, K. Shigemori, M. Nakai, S. Fujioka, Y. Shimada, K. Hashimoto, M. Yamaura, S. Uchida, R. Matsui, T. Hibino, et al.: *J. Plasma Fusion Res.* **80** (2004) 325.
- 14) T. Mochizuki, T. Yabe, K. Okada, M. Hamada, N. Ikeda, S. Kiyokawa, and C. Yamanaka: *Phys. Rev. A* **33** (1986) 525.
- 15) H. Fiedorowicz, A. Bartnik, Z. Patron, and P. Parys: *Appl. Phys. Lett.* **62** (1993) 2778.
- 16) H. Fiedorowicz, A. Bartnik, M. Szczurek, P. Parys, P. M. Celliers, L. B. Da Silva, S. Mrowka, C. B. Dane, D. L. Matthews, and J. A. Abate: *Proc. SPIE* **2523** (1995) 60.
- 17) H. Fiedorowicz, A. Bartnik, R. Jarocki, R. Rakowski, and M. Szczurek: *Appl. Phys. B* **70** (2000) 305.
- 18) A. Shimoura, S. Amano, S. Miyamoto, and T. Mochizuki: *Appl. Phys. Lett.* **72** (2) (1998) 164.
- 19) T. Mochizuki: U. S. Patent 6320937 (Nov. 20, 2001).
- 20) T. Mochizuki: *Proc. of SPIE* **3886** (2000) 306.
- 21) A. Shimoura, T. Mochizuki, S. Miyamoto, S. Amano, and T. Uyama: *Appl. Phys. Lett.* **75** (1999) 2026.
- 22) T. Mochizuki: EUVA R&D Report (FY2002) 105-114, eds by EUVA, June 10, 2003.
- 23) G. Kubiak, L. J. Bernardez, and K. D. Krenz: *Proc. SPIE* **3331** (1998) 81.
- 24) H. Komori, T. Abe, T. Suganuma, Y. Imai, Y. Sugimoto, H. Someya, H. Hoshino, G. Soumagne, Y. Takabayashi, H. Mizoguchi, et al.: *J. Vac. Sci. Technol. B* **21** (2003) 2843.
- 25) J. Blackburn, P. K. Carroll, J. Costello, and G. Osullivan: *J. Opt. Soc. Am.* **73** (1983) 1325.
- 26) G. O'Sullivan and P. K. Carroll: *J. Opt. Soc. Am.* **71** (1981) 227.
- 27) J. Sugar and V. Kaufman: *Phys. Scr.* **26** (1982) 419.
- 28) M. Klapisch and A. Bar-Shalom: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **58** (1997) 687.
- 29) F. A. Parpia, C. F. Fischer, and I. P. Grant: *Comput. Phys. Commun.* **94** (1996) 249.