錫ターゲットを用いたレーザー生成プラズマ極端紫外光源からのデブリ放出特性

中村 大輔¹, 秋山 智哉¹, 高橋 昭彦², 岡田 龍雄¹

¹九州大学大学院 システム情報科学研究院 (〒819-0395 福岡市西区元岡744)

²九州大学大学院 医学研究院 (〒812-8582 福岡市東区馬出3-1-1)

Time-Resolved Diagnostics of Debris from Laser-Produced Sn Plasma for EUV Light Source

Daisuke NAKAMURA,¹ Tomoya AKIYAMA,¹ Akihiko TAKAHASHI,² and Tatsuo OKADA¹

¹Graduate School of Information Science and Electrical Engineering, Kyushu University, 744 Motoooka, Nishi-ku, Fukuoka 819-0395

²Graduate School of Medical Sciences, Kyushu University, 3-1-1 Maidashi, Higashi-ku, Fukuoka 812-8582

(Received May 13, 2008)

The dynamics of debris from laser-produced tin (Sn) plasma was investigated in order to establish the guideline for a practical extreme ultraviolet (EUV) lithography source. A comparative investigation on the emission characteristics of debris from CO₂ laser-produced Sn plasma and Nd:YAG laser-produced Sn plasma was investigated. The results showed higher ion kinetic energy and lower particle emission for the CO₂ laser than the Nd:YAG laser for the same laser energy. The kinetic behaviors of the Sn atoms and of the dense particles from Sn droplet target irradiated by double pulses from the Nd:YAG laser and the CO₂ laser were also investigated by the laser-induced fluorescence imaging method and a high-speed imaging, respectively. After the pre-pulse irradiation of the Nd:YAG laser, the Sn atoms were ejected in all direction from the target and the irradiated target by the pre-pulse was almost disappeared by main-pulse irradiation.

Key Words: EUV, Laser-produced plasma, Debris, LIF, Shadowgraph

1. はじめに

現在、波長13.5 nmの極端紫外(EUV: Extreme Ultraviolet)光を用いた次世代光リソグラフィ技術の実用化へ向けた研究が盛んに行なわれている。実用的なEUVリソグラフィ装置において、光源に求められる出力は中間集光点で115-180 W(13.5 nm, 2 %帯域幅)とされており¹⁾, このEUV光の生成には、高強度レーザーを用いたレーザー生成プラズマ(LPP: Laser-Produced Plasma)の発光を利用する方式と放電を用いた放電生成プラズマ(DPP: Discharge Produced Plasma)を用いた方式が考えられている^{2,3)}。実用EUVリソグラフィ装置には、180 WのEUV光出力の他にも光源サイズなど条件が要求されるが、中でも安定性と長時間の連続運転が重大な要求項目である。したがって、EUV光源開発の研究においてはi)注入エネルギーからEUV光への変換効率(CE: Conversion Efficiency)を向上すること, ii)ミラーなどの光学素子の汚損による寿命低下を抑制することが解決すべき重要な課題点として挙げられる。近年、高CEなターゲットとして錫(Sn)が用いられるようになってきたが、Snはイオンや中性原子などのデブリの生成量も多いため、ミラーの長寿命化のためにはこのデブリの問題を解決する必要がある。

本研究グループでは、LPP方式によるEUV光源の開発に関する研究を行っており、これまでにCO₂レーザーとSn

平板を用いたLPPにおいて、従来のNd:YAG-LPPに劣らないCEとスペクトル純度を持つことを初めて実証した⁴⁾。CO₂レーザーの方がNd:YAGレーザーに比べて高いCEが得られることは理論的にも示されており⁵⁾, CO₂レーザーにより4 %を超えるCEを実験的に示した報告もある⁶⁾。したがって、近年のEUV光源の開発においては、CO₂レーザーとSnターゲットの組み合わせが最も有力な候補と考えられている。

一方、EUV光源から放出されるデブリに関しては、これまでにNd:YAG-LPPを中心にイオン計測^{7,8)}をはじめ多くの研究がなされている。本研究グループにおいてはレーザー誘起蛍光法(LIF: Laser-Induced Fluorescence)を用いた可視化計測技術によって中性原子デブリの挙動を明らかにした^{9,10)}。最近CO₂-LPPにおけるデブリ発生特性についても研究が進められているが¹¹⁾, 現在のところ十分な研究はなされていない。

近年、デブリ抑制の観点からレーザーパルス当たりに必要なEUV光を満たす最小の質量に制限した質量制限ターゲットが注目されている^{12,13)}。10~100 kHzの高繰り返し運転を想定した場合、ターゲットの連続供給を考慮すると小球(ドロップレット)の形状が提案されており、そのサイズは数10 μmと見積もられ、最近ドロップレットターゲットの生成装置の開発^{14,15)}など実用化に向けた研究が盛んに行なわれている。さらに、このドロップレット

に対してレーザー光をダブルパルス照射¹⁶⁻¹⁸⁾する方式の適用が提案されている。13.5 nm帯のEUV光の発生はターゲットのイオン密度や電子温度などのプラズマのパラメーターに大きく依存し、EUV光発生のための最適条件もシミュレーションにより明らかにされてきている⁵⁾。この理論計算によるとCO₂レーザーをドライバーレーザーとして用いる場合、プレパルスによってターゲットを予備膨張させ最適スケール長200 μm 程度のプラズマ状態を生成することができれば、EUV光への変換効率の向上が期待される。これは、CO₂レーザー光の密度スケール長と13.5 nmのEUV光のオパシティ効果による光学的厚みに起因する。また、プレパルスには予備膨張させることによるメインパルスのビームサイズとターゲットサイズのカップリングを高める効果もある。したがって、このドロップレットターゲットを利用したLPPにおけるプラズマダイナミクスの解明が必要であるが、これまで十分な調査が行われていない。

本論文では、CO₂レーザー生成プラズマから放出されるデブリの基礎実験と実用ターゲットとして期待されているドロップレットターゲットを用いた実験の結果を報告する。まず、第2章では平板Snターゲットを用いてCO₂レーザー生成プラズマから放出されるイオン粒子やドロップレットデブリに関してNd:YAGレーザー生成プラズマにおけるデブリ放出特性との比較を行なった。第3章では、Snドロップレットターゲットを用いたLPPにおける中性原子デブリの放出特性およびターゲットのアブレーションダイナミクスの計測結果を報告する。第4章では、プレパルスにNd:YAGレーザー、メインパルスにCO₂レーザーを用いたダブルパルス照射におけるターゲットのアブレーションダイナミクスに関して述べている。

2. CO₂-LPPとNd:YAG-LPPにおけるデブリ放出特性の比較

これまでNd:YAGレーザーをドライバーレーザーとしたEUV光源の研究がなされてきたが、近年、CO₂レーザーをドライバーレーザーとした研究も多く進められている。この2種類のレーザーは波長が1桁異なるため、レーザー光のカットオフ密度の違いによって発生するデブリの放出特性もそれぞれ異なると考えられる。そこで、本研究ではCO₂-LPPとNd:YAG-LPPからのデブリ放出特性を調査した。実験にはSn平板ターゲットを用いてそれぞれのレーザーを平板表面に対して垂直照射させた。レーザーの光軸から29, 41, 55, 67度の角度でターゲットから110 mm離れた位置にファラデーカップと水晶発振器質量計(QCM: Quartz-Crystal Microbalance)、およびウィットネスプレートとしてSi基板をそれぞれ設置し、イオンエネルギーと飛散するドロップレットデブリを測定した。Fig. 1(a)にNd:YAGレーザー、Fig. 1(b)にCO₂レーザー照射に対するイオン信号の測定結果を示す。レーザー強度は、Nd:YAGが $2 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ 、CO₂が $8 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ であった。ただし、Nd:YAGレーザーのパルス幅は8 ns、CO₂レーザーのパルスに関しては、1 μs 程度あるテイルの影響

Fig. 1 Ion signals from (a) Nd:YAG and (b) CO₂ laser-produced Sn plasma.

を除くためにプラズマシャッターを用いて半値幅20 nsのパルスとして照射した。CO₂-LPPの信号から、レーザー入射強度がNd:YAG-LPPに比べて半分以下であるにもかかわらず高エネルギーのイオンを放出していることを示唆している。このことを明確にするためにイオンの価数がすべて等しいとしてファラデーカップの信号と計測位置からイオンエネルギーを求めた。Fig. 2に見積もられたイオンエネルギー分布を示す。このようにCO₂-LPPのイオンエネルギーが大きいのは、CO₂レーザー光は長波長ゆえにプラズマの表層で吸収されるので電子温度がNd:YAG-LPPより高くなること、またNd:YAGレーザーに比べてパルス幅が長いことによるものと考えられる。高温の電子は飛散してプラズマ表面に加速電場を作る。この電場は電子温度が高いほど、またレーザーパルス幅が長くなるほど大きくなることが村上らによって示されている^{19,20)}。次に、ファラデーカップと同じ位置に置いたQCMによって測定されたデブリ堆積量のショット数に対する変化をFig. 3に示す。図よりわかるようにCO₂-LPPからの放出量はNd:YAG-LPPに比べて半分以下という結果となった。このようにCO₂-LPPの方が低いデブリ放出量となった理由として、CO₂レーザーの場合、レーザー吸収点とターゲット固体表面の距離(スタンドオフ距離)が広がりレーザー吸収点からターゲット表面への熱輸送が抑制されることで、熔融液滴等のドロップレットが発生しにくいためと考えられる。ウィットネスプレート上に堆積したドロップレツ

Fig. 2 Ion energy spectra of Nd:YAG laser- and CO₂ laser-produced Sn plasma.

Fig. 3 Debris accumulation from (a) Nd:YAG laser- and (b) CO₂ laser-produced Sn plasma, where the pulse energy is 50 mJ.

トを比較してもNd:YAGレーザーの方が、比較的大きなサイズのドロップレットが生成されているのに対し、CO₂レーザーの方は、堆積量も少なく堆積しているドロップレットの小さなサイズも非常に小さいものであった。これらの結果も、前述のターゲット表面への熱輸送の抑制に起因するものと推測される。

3. ドロップレットのアブレーションダイナミクス計測

3.1 デブリダイナミクスの可視化計測装置

ドロップレットのアブレーションダイナミクス計測について、中性原子デブリのみでなく照射されたターゲットの挙動についても詳細に調査を行なうために、これまで中性原子の挙動計測に用いていたLIF可視化計測システムに加えて、高時間分解カメラを用いたシャドウグラフィイメージングシステムを導入した。Fig. 4にデブリ挙動計測の実験装置を示す。チャンパー内にターゲットを設置して 10^{-3} Paまで減圧し、ドライバーレーザーにはNd:YAGレーザー (Continuum Powerlite8000, 1064 nm, 8 ns)を用いて、レーザー照射強度は、 5×10^{11} W/cm²程度で行なった。発生した中性原子に関しては、Snの励起スペクトルに同調したプローブビームをシート状に整形して生成プラズマに照射した。LIFシステムの詳細については文献を参照されたい⁹⁾。照射されたドロップレットターゲットに関しては、LDを光源とした高速時間分解ICCDカメラ (Hadland Photonics Ltd. Imacon468)によってシャドウグラフを連続的に計測した。このLIFイメージングとシャドウグラフはパルスジェネレーターにより同期して動作させることが可能である。

Fig. 4 Experimental setup.

3.2 ドロップレットからの中性原子挙動計測

実験に用いた数10 μ mのドロップレットは、本研究で開発したレーザーを用いた簡易的なドロップレット生成装置により作製された。本来であれば、空間的に独立したドロップレットに対してレーザー照射を行なうのが理想であるが、今回の実験では作製されたドロップレットを直径約10 μ mのポリアミドファイバの側面に付着させ、そこにレーザーを照射させた。Fig. 5はレーザー照射からの各ディレイにおけるSn中性原子の放出分布を示す。このとき、ドロップレットサイズは直径約30 μ mであり、レーザー光は画像の左側から入射されている。また、照射前のターゲットは各画像の中心に位置している。この結果よりマイクロサイズの質量制限ターゲットからも中性原子の発生が確認され、その分布は、各ショットにばらつきはあるものの、ターゲットを中心として空間的に全方向へ広がっていることがわかった。また、ディレイ400 nsの画像を用いて中性原子の飛散速度を算出したところ、最大で約20 km/sと見積もられた。これは、Sn平板ターゲットから放出される中性原子と同等の速度であった⁹⁾。本実験で用いたドライバーレーザーのビームスポットは約100 μ mであるのにドロップレットサイズは30 μ mである。したがって、照射されたレーザーの一部は、ターゲットの脇を通り過ぎていったと考えられる。レーザー照射によって放出される粒子の分布は、ターゲット表面の曲率に依存するが、今回の結果では中性原子は全方向へ放出されている。この理由としては、ドロップレット表面で発生した高温高压のプラズマが瞬時にドロップレットサイズ以上に膨張して、中性原子が全方向へ放出されたものと考えられる。

3.3 レーザー照射されたドロップレットの時間分解シャドウグラフ

次に、レーザー照射されたターゲットの挙動に関してシャドウグラフによって計測を行なった。Fig. 6にレーザー照射されたターゲットのシャドウグラフを示す。レーザーは画像左から照射されており、右上の時間はレーザー照射からのディレイを示している。なお、この結果はFig. 5に示す結果とは異なり、一連の挙動を連続撮影した結果となっている。このときのドロップレットサイズは、LIF計測時と同様に30 μ mである。レーザー照射直後に強いプラズマ発光が確認され、このプラズマのエネルギーによりファイバは瞬時に切断されている。その後、ディレイに応じて照射されたターゲットの影が画像の右側へシフトしながら広がっているのがわかる。これ

Fig. 5 The temporal changes in the spatial distribution of Sn atoms from the droplet target with a diameter of 30 μ m at different delay times after laser irradiation.

Fig. 6 The shadowgraphs of the irradiated target debris at different delay times after the Nd:YAG laser irradiation.

は、プラズマのエネルギーによるものと考えられ、このときのシフト速度は約500 m/sと見積もられた。また、ディレイ800 ns～1 μsでは高密度の影が薄れて小さな粒状の影が現れていることがわかる。この後方へ飛散している影に関してドロップレット後方15 mmの位置にウィットネスプレートを設置し、捕集を試みたところ、Fig. 7に示すように融解したターゲットがプレート表面に付着していた。付着したターゲットの体積から飛散している液状の粒のサイズは約1～6 μm程度と見積もられた。したがって、照射されたターゲットの一部は、蒸発しきれずに液体デブリの状態の後方へ飛散していると考えられる。

4. ダブルパルス照射時のデブリ挙動計測

ダブルパルスの概念としては、プレパルスによってターゲットを膨張させ、メインパルスレーザーによって効率的にEUV光を発生させるものであり、Nd:YAGレーザーをプレパルスに用いた場合、Fig. 6のようにターゲットが膨張することとなる。メインパルスには、これまでの研究で優位性が実証されたCO₂レーザーを用いることとした。ダブルパルス照射の実験装置図をFig. 8に示す。メインパルス用のCO₂レーザー(Lambda Physik, EMG201MSC)は半値幅50 nsのパルスの後に約1 μsのテイルをもつ波形で、 1.6×10^9 W/cm²の出力にて照射した。プレパルス用のNd:YAGレーザーとCO₂レーザーのなす角度は45度の角度でFig. 8に示すように照射され、CO₂レーザーの光軸に垂直な方向からシャドウグラフを計測した。プレパルスとメインパルスのディレイは800 nsとした。この時間は、プレパルスを照射されたドロップレットの粒子雲がCO₂レーザーのビームスポットである約500 μm近くまで広がるのに要する時間として設定した。Fig. 9にダブルパルス照射時のシャドウグラフを示す。ディレイ0 nsでプレパルスが画像左奥手

Fig. 7 Photographs of the witness plate surface.

Fig. 8 Experimental setup for double pulses irradiation.

Fig. 9 The shadowgraphs of the Sn droplet target irradiated by the double pulses of Nd:YAG laser and CO₂ laser at different delay times.

から照射されたことによるプラズマ発光が確認され、ターゲットは膨張しながら後方へシフトしていることがわかる。ディレイ800 nsにおいてメインパルスが照射され、膨張している粒子雲全体からプラズマ発光が確認された。その後、時間経過に伴って粒子雲が減少していることがわかる。したがって、ダブルパルス照射によってマイクロサイズのドロップレットを効率的にプラズマ化できる可能性が示された。プレパルスとメインパルスのディレイやプレパルスの照射強度の最適化することでデブリの少ないEUV光源が期待できる。しかし、注意しなければならない点として、前述した中性原子の放出がある。プレパルス照射後、中性原子は全方向に高速で飛散するため、ディレイ800 nsでメインパルスが照射された時点において放出された中性原子の一部は、メインパルスのスポットサイズ以上に広がっていることになる。したがって、ダブルパルス照射でも中性原子の一部は発生してしまうことになり、この中性原子の対策が必要となる。

5. まとめ

本研究では平板Snターゲットを用いてCO₂-LPPとNd:YAG-LPPにおけるデブリ放出特性の比較実験を行ない、プラズマのカットオフ密度の影響によりCO₂-LPPの方がNd:YAG-LPPに比べミラーに堆積する恐れのあるデブリ放出量が少ないことがわかった。発生するイオンのエネルギーについてもCO₂-LPPの方が大きいことから、イオンによるミラーのスパッタリングが懸念されるが、イオンのエネルギーはパルス幅に依存するためパルス幅の短いCO₂

レーザーを用いることでエネルギー分布は低い方へ変化すると考えられる。次に、プレパルスにNd:YAGレーザー、メインパルスにCO₂レーザーを用いたダブルパルス照射におけるドロップレットターゲットのアブレーションダイナミクスの計測を行なった。直径30 μm のドロップレットターゲットに対してNd:YAGレーザーを照射することで、中性原子はターゲットを中心として空間的に全方向へ広がり、その飛散速度は最大で約20 km/sと見積もられた。また、照射されたターゲットは膨張しながら約500 m/sの速度で後方へシフトしており、その膨張している粒子雲の中には液状のデブリも存在していることがわかった。メインパルスであるCO₂レーザー照射により、プレパルスによって膨張している粒子雲が蒸発していく過程が計測された。したがって、ダブルパルス照射によってマイクロサイズのドロップレットを効率的にプラズマ化できる可能性が示された。ただし、プレパルスによって発生した高速中性原子の一部は、メインパルスのビームスポット以上に広がっていると考えられるため、ミラーの汚損を防ぐ新たな対策が必要となる。

謝 辞

本研究は文科省リーディングプロジェクト「極端紫外(EUV)光源開発等の先進半導体製造技術の実用化」の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) U. Stamm: J. Phys. D **37** (2004) 3244.
- 2) J. Jonkers: Plasma Sources Sci. Technol. **15** (2006) S8.
- 3) K. Kemp and S. Wurm: C. R. Physique **7** (2006) 875.
- 4) H. Tanaka, A. Matsumoto, K. Akinaga, A. Takahashi, and T. Okada: Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 041503.
- 5) K. Nishihara, A. Sunahara, A. Sasaki, M. Nunami, H. Tanuma, S. Fujioka, Y. Shimada, K. Fujima, H. Furukawa, T. Kato, F. Koike, R. More, M. Murakami, T. Nishikawa, V. Zhakhovskii, K. Gamata, A. Takata, H. Ueda, H. Nishimura, Y. Izawa, N. Miyanaga, and K. Mima: Phys. Plasmas **15** (2008) 056708.
- 6) Y. Ueno, G. Soumagne, A. Sumitani, A. Endo, and T. Higashiguchi: Appl. Phys. Lett. **91** (2006) 231501.
- 7) S. Fujioka, H. Nishimura, K. Nishihara, M. Murakami, Y. G. Kang, Q. Gu, K. Nagai, T. Norimatsu, N. Miyanaga, Y. Izawa, K. Mima, Y. Shimada, A. Sunahara, and H. Furukawa: Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 241503.
- 8) T. Higashiguchi, M. Hamada, and S. Kubodera: Rev. Sci. Instrum. **78** (2007) 036106.
- 9) H. Tanaka, Y. Hashimoto, K. Tamaru, A. Takahashi, and T. Okada: Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 181109.
- 10) D. Nakamura, H. Tanaka, K. Tamaru, Y. Hashimoto, A. Takahashi, and T. Okada: J. Appl. Phys. **102** (2007) 123310.
- 11) Y. Ueno, G. Soumagne, A. Sumitani, A. Endo, T. Higashiguchi, and N. Yugami: Appl. Phys. Lett. **92** (2008) 211503.
- 12) S. Namba, S. Fujioka, H. Nishimura, Y. Yasuda, K. Nagai, N. Miyanaga, Y. Izawa, K. Mima, and K. Takiyama: Appl. Phys. Lett. **88** (2006) 171503.
- 13) M. Richardson, C. S. Koay, K. Takenoshita, and C. Keyser: J. Vac. Sci. Technol. **B 22** (2004) 785.
- 14) J. M. Algots, O. Hemberg, and A. Bykanov: Proc. SPIE **5751** (2005) 885.
- 15) M. Nakano, T. Yabu, H. Someya, T. Abe, G. Soumagne, A. Endo, and A. Sumitani: Proc. SPIE **6921** (2008) 692130.
- 16) R. Kodama, T. Mochizuki, K. A. Tanaka, and C. Yamanaka: Appl. Phys. Lett. **50** (1987) 720.
- 17) T. Higashiguchi, N. Dojyo, M. Hamada, K. Kawasaki, W. Sasaki, and S. Kubodera: Proc. SPIE **6151** (2006) 615145.
- 18) Y. Tao, M. S. Tillack, S. S. Harilal, B. O'Shay, and F. Najmabadi: UCSD report, UCSD-CER-05-07 (2005).
- 19) P. Mora: Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 185002.
- 20) M. Murakami, Y. G. Kang, K. Nishihara, S. Fujioka, and H. Nishimura: Phys. Plasmas **12** (2005) 062706.